

**UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS**

**FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA**

**ÁREA DE CONCENTRAÇÃO  
ENGENHARIA DE PROCESSOS**

**GRANULAÇÃO DE CELULOSE MICROCRISTALINA EM LEITO  
VIBROFLUIDIZADO**

**Autora:** Suzara Santos Costa

**Orientadora:** Prof<sup>ª</sup> Dr<sup>ª</sup> Sandra Cristina dos Santos Rocha

**Co-Orientadora:** Prof<sup>ª</sup> Dr<sup>ª</sup> Virgínia Aparecida da Silva Moris

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

Campinas - São Paulo

Maio de 2009

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

C823g Costa, Suzara Santos  
Granulação de celulose microcristalina em leito  
vibrofluidizado / Suzara Santos Costa. --Campinas, SP:  
[s.n.], 2009.

Orientadores: Sandra Cristina dos Santos Rocha,  
Virgínia Aparecida da Silva Moris.

Dissertação de Mestrado - Universidade Estadual de  
Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

1. Leito fluidizado. 2. Fluidização. 3. Revestimento.  
I. Rocha, Sandra Cristina dos Santos. II. Moris, Virgínia  
Aparecida da Silva. III. Universidade Estadual de  
Campinas. Faculdade de Engenharia Química. IV.  
Título.

Título em Inglês: Granulation of microcrystalline cellulose in a  
vibrofluidized bed

Palavras-chave em Inglês: Fluidized bed, Fluidization, Surface coatings

Área de concentração: Engenharia de Processos

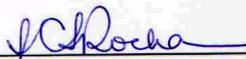
Titulação: Mestre em Engenharia Química

Banca examinadora: Lênio José Guerreiro de Faria, Meuris Gurgel Carlos  
da Silva

Data da defesa: 12/05/2009

Programa de Pós Graduação: Engenharia Química

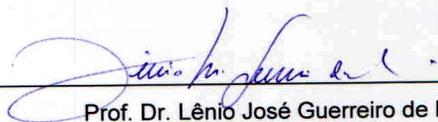
Dissertação de Mestrado defendida por Suzara Santos Costa e aprovada em 12 de maio de 2009 pela banca examinadora constituída pelos doutores:



---

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

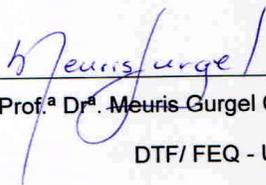
DTF/ FEQ - UNICAMP



---

Prof. Dr. Lênio José Guerreiro de Faria

ITEC – UFPA

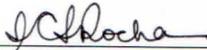


---

Prof.<sup>a</sup> Dr.<sup>a</sup>. Meuris Gurgel Carlos da Silva

DTF/ FEQ - UNICAMP

Este exemplar corresponde à versão final da Dissertação de Mestrado em Engenharia Química.



---

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

*À minha família, com muito amor.*

*“Para ser grande, sê inteiro: nada  
Teu exagera ou exclui.  
Sê todo em cada coisa. Põe quanto és  
No mínimo que fazes.  
Assim como em cada lago a lua toda  
Brilha, porque alta vive.”*

*(Fernando Pessoa sob o heterônimo de Ricardo Reis)*

## AGRADECIMENTOS

À Deus, pelo exemplo de bondade e sabedoria! Agradeço, também, por tudo que tenho de mais importante na minha vida. Obrigada!

Aos meus pais pelo apoio e incentivo, incondicionais, para o início da minha jornada profissional. Sônia e Luiz são minha base e exemplo de amor, dedicação e muita coragem. Sempre se empenharam para que eu e meus irmãos pudéssemos estudar em bons colégios e boas universidades. Não canso de contar a história de vida dos dois, nem do amor deles que foi o início da construção de uma família forte e unida! Amo vocês!!!

Ao meu irmão, Luis Cesar, e sua esposa, Marina, que me ajudaram muito durante esses dois anos em Campinas. Não foram raras as nossas conversas, tão pouco a força que me passaram para que eu concluísse o curso. Sempre presentes e me ajudando naquilo que eu precisasse. Não poderia deixar de agradecê-los, por isso, obrigada!

A minha irmã caçula, Juliana, que me mostrou que tendo fé, tudo fica menos doloroso! Diante de um problema de saúde foi capaz de manter o bom humor e o sorriso no rosto. Como minha confidente virtual, participou de todos os momentos nesses dois longos anos. Eu te amo!

Ao Ricardo que para mim é um exemplo de superação! Suas palavras de carinho sempre foram reconfortantes e, sua história, uma lição de vida para mim. Amo você, meu amor! Agradeço, também, pela ajuda com o Abstract!!!

À professora e orientadora de curso e de vida, Sandra Cristina dos Santos Rocha. Ao trabalhar com ela, tive a oportunidade de descobrir a excelente profissional e pessoa que é. Nossas reuniões quinzenais sempre foram muito produtivas! Também, tive a oportunidade de exercer minha primeira co-orientação com a iniciação científica, graças a

ela. Gostei muito de ter tido essa oportunidade! Agradeço, também, pela compreensão durante o curso.

A minha co-orientadora, Virgínia Aparecida da Silva Moris, pela suas explicações a respeito do leito vibrofluidizado e companhia durante a execução de alguns experimentos. Agradeço, também, pela confiança e amizade.

A minha aluna de iniciação científica, Viva, cujo nome peculiar já é digno de aclamação. Sempre pude contar com a Viva, que desenvolveu um trabalho de iniciação científica muito bom e com muita responsabilidade. Diante de tanto trabalho experimental, demorado (diga-se de passagem!), jamais protestou ou deixou de comparecer no horário. Muitos ensaios do planejamento foram executados aos sábados, e ainda sim, pude contar com ela. Muito obrigada!

A CAPES, pelo apoio financeiro para o desenvolvimento deste trabalho.

Ao seu Levi, que contribuiu para que o leito vibrofluidizado sempre se mantivesse funcionando! Obrigada pela ajuda!

Aos colegas de laboratório (Laboratório de Fluidodinâmica e Secagem): Gaby, Camila, Janaína (FEA), Janaína (FEQ), César, Elisa, Roberto e Fernanda pela troca de experiências e conhecimento.

Por fim, gostaria de registrar minha satisfação em ter sido aprovada para o ingresso no curso de Mestrado da Faculdade de Engenharia Química da Unicamp. Fui muito feliz e agradecida por tudo que aconteceu durante o desenvolvimento do trabalho.

## RESUMO

O leito vibrofluidizado (LVF) consiste na aplicação de vibração mecânica ao leito fluidizado convencional com o objetivo de reduzir a ocorrência de bolhas, canais preferenciais e evitar o fenômeno da defluidização em processos como recobrimento, granulação, entre outros. A utilização do LVF é diversificada para materiais coesivos, adesivos, aglomerados e pastosos. A granulação consiste no aumento da partícula mediante a incorporação de materiais ativos e/ou inertes e é um importante processo utilizado com o objetivo de melhorar aspecto, manuseio, compactação e transporte de partículas finas. Esse processo é bastante encontrado na literatura com o uso em leitos fluidizados convencionais, contudo, o processamento de materiais que possuem forças interpartículas intensas quando sujeitos a aspersão de ligantes, torna-se difícil e dispendioso. A celulose microcristalina é originada da hidrólise ácida da celulose e utilizada, entre outros usos industriais, como estabilizante e aditivo alimentício. Na indústria farmacêutica, é um dos excipientes mais utilizados em formulações de dosagem oral. Baseado no exposto foi realizado um estudo sobre a granulação da celulose microcristalina em leito vibrofluidizado, utilizando como ligante solução de matodextrina 35%. A solução foi aspergida sobre o leito de partículas através de um sistema de atomização acoplado ao leito vibrofluidizado. Foi desenvolvido um planejamento experimental fatorial fracionário ( $2^{5-1}$ ), cujas variáveis operacionais foram: amplitude (A) e frequência (f) de vibração, pressão de atomização (P), temperatura do ar de entrada (T) e vazão de solução (Q). Os níveis das variáveis de entrada no planejamento foram: 0,01m e 0,02m; 3 Hz e 6 Hz, 5 Psig e 15 Psig, 60°C e 80°C e 4 ml/min e 10 ml/min, respectivamente. O planejamento foi desenvolvido com 4 repetições no ponto central. Para avaliar a qualidade do produto foram analisadas três variáveis de resposta, que resultaram nas seguintes faixas: crescimento da partícula – 3,17% a 33,11%, ângulo de repouso – 8,4° a 12° e índice de aglomerados – 0,2% a 5,69%. Com o experimento estatisticamente planejado constatou-se que todas as variáveis independentes influenciaram as variáveis de resposta consideradas e, portanto, não foi possível estabelecer um planejamento completo com um número menor de variáveis. O comportamento fluidodinâmico da celulose microcristalina antes da granulação também foi estudado. As curvas obtidas refletiram um comportamento característico encontrado na literatura de leitos vibrofluidizados. A fluidodinâmica do material permitiu, embora com dificuldade, determinar a velocidade de mínima fluidização (pelo método convencional da interseção das retas em leitos fluidizados) e velocidade de mínima fluidização completa para leitos vibrofluidizados. A velocidade de mínima mistura do material também foi determinada, mas por observação visual durante os experimentos. A velocidade de operação foi estabelecida em 0,30 m/s após os ensaios preliminares de fluidodinâmica e de granulação. O produto final obtido após o processo de granulação apresentou boa escoabilidade e um aumento no seu diâmetro médio de Sauter, confirmando a granulação da celulose microcristalina e revelando o leito vibrofluidizado como equipamento promissor para efetuar o processo de granulação.

## ABSTRACT

The vibrofluidized bed (VFB) consists in applying mechanical vibration to the conventional fluidized bed to reduce the occurrence of bubbles, preferential channeling and defluidization phenomena, which are common when fluidizing cohesive, adhesive and paste materials. Granulation is used to increase particle size through incorporation of active materials and/or inert and it is a very important process to improve the appearance, handling and transport of fine particles. Granulation is usually conducted using conventional fluidized beds; however, the processing of powders having high interparticle forces, when subjected to intense spraying of binders, is difficult and expensive. Microcrystalline cellulose is a fine powder that is originated from acid hydrolysis of cellulose and is used, among other industrial uses, as a stabilizer, food additive and carrier in drugs. This work reports the analysis of wet granulation of microcrystalline cellulose in a vibrofluidized bed using an aqueous maltodextrina solution as binder. A factorial experimental design ( $2^{5-1}$ ) was developed with the independent variables: vibration amplitude (A) and frequency (f), atomization pressure (P), inlet air temperature (T) and maltodextrin solution flow rate (Q). The responses analyzed were in the following levels: particle growth – 3.17% to 33.11%, angle of repose – 8.4° to 12° and percentage of lumps – 0.2% to 5.69%. The statistical analysis of the experimental design was able to determine that all the independent variables showed significant influence on the process and so it was not possible to perform an experimental design with a smaller number of variables. The fluid dynamics of the bed of microcrystalline cellulose before granulation was also analyzed and it presented the behavior of fluid dynamic curves of vibrofluidized beds found in the literature. In spite of the difficulty, the fluid dynamic curves allowed to determine the minimum fluidization velocity (conventional method of intersection of straight lines of fixed and fluidized regions) and complete minimum fluidization for vibrofluidized beds. The velocity of minimum mixture was also determined, by visual observation. The operation velocity was set at 0.30 m/s based on the dynamic tests and preliminary tests of granulation. The final product showed excellent flowability and generated an increase in its mean Sauter diameter, thus confirming the granulation of microcrystalline cellulose and showing the vibrofluidized bed as promising equipment for this process.

## SUMÁRIO

	Lista de Figuras	v
	Lista de Tabelas	vii
	Nomenclatura	viii
1	Introdução	1
2	Revisão Bibliográfica	3
2.1	Celulose Microcristalina	3
2.2	Fluidização	7
2.2.1	Tamanho de Partículas	11
2.2.2	Fluidização de Partículas Coesivas	13
2.3	Leito Vibrofluidizado (LVF)	18
2.3.1	Características e Aplicações	18
2.3.2	Regimes de Operação	19
2.3.3	Fluidodinâmica do Leito Vibrofluidizado	21
2.3.3.1	Velocidade de Mínima Fluidização	23
2.4	Granulação	26
2.4.1	Definição	26
2.4.2	Por que granular?	26
2.4.3	Granulação Úmida	27
2.4.4	Granulação em Leito Fluidizado	28
2.4.4.1	Formação dos Grânulos	31
A.	Umidificação e Nucleação	32
B.	Consolidação e Crescimento	33
C.	Quebra e Atritação	34
3	Materiais e Métodos	35
3.1	Materiais	35
3.1.1	Matéria-Prima	35
3.1.2	Solução Granulante	35
3.2	Equipamento Experimental	37
3.3	Metodologia	41
3.3.1	Ensaio Fluidodinâmico	41

3.3.2	Ensaio Preliminares	42
3.3.3	Planejamento Fatorial de Experimentos	45
3.3.4	Caracterização das partículas	47
3.3.4.1	Análise Granulométrica	48
3.3.4.2	Ângulo de Repouso	50
3.3.4.3	Razão Hausner	52
4	Resultados e Discussão	54
4.1	Ensaio Fluidodinâmicos	54
4.1.1	Análise das Curvas Fluidodinâmicas	54
4.2	Ensaio Preliminares de Granulação	64
4.3	Planejamento Experimental	67
4.3.1	Análise Qualitativa da Granulação	68
4.3.2	Análise Estatística	72
4.3.2.1	Resultados para Crescimento da Partícula (C - %)	72
4.3.2.2	Resultados para Ângulo de Repouso $\alpha_r$ (°)	76
4.3.2.3	Resultados para Índice de Aglomeração $I_{Agl}$ (%)	78
4.4	Caracterização das Partículas	80
4.4.1	Análise Granulométrica	80
4.4.2	Razão Hausner	86
5	Conclusões e Sugestões	89
5.1	Conclusões	89
5.2	Sugestões para trabalhos futuros	91
6	Referências	92

## LISTA DE FIGURAS

FIGURA 2.1	As três formas básicas de celulose microcristalina: pó, dispersão coloidal, e gel em pasta	4
FIGURA 2.2	Regimes de fluidização	8
FIGURA 2.3	Esquema da queda de pressão em função da vazão de ar para um leito convencional	9
FIGURA 2.4	Diagrama de Geldart	12
FIGURA 2.5	Razão ângulo de repouso/ densidade bulk em função da razão Hausner	17
FIGURA 2.6	Curvas fluidodinâmicas: (a) Leito fluidizado convencional; (b,c,d) leito vibrofluidizado	22
FIGURA 2.7	Esquema do método para estimar $U_{mf}$ em leito fluidizado convencional	23
FIGURA 2.8	Granulação em leito fluidizado	29
FIGURA 2.9	Mecanismo de aglomeração	31
FIGURA 2.10	Mecanismos de nucleação. (a) Mecanismo de distribuição. (b) Mecanismo de imersão	32
FIGURA 2.11	Mecanismos de crescimento	33
FIGURA 3.1	Esquema do leito vibrofluidizado	37
FIGURA 3.2	Leito vibrofluidizado com sistema de atomização (demarcado)	38
FIGURA 3.3	Sistema vibracional	40
FIGURA 3.4	Sistema de atomização	41
FIGURA 3.5	Luva móvel do leito vibrofluidizado	43
FIGURA 3.6	Altura do bico atomizador	44
FIGURA 3.7	Esquema de operação de um planejamento de experimentos	45
FIGURA 3.8	Ângulo de repouso (a) estático; (b, c) dinâmico	51
FIGURA 3.9	Representação da metodologia utilizada	52
FIGURA 4.1	Curvas fluidodinâmicas: (a) $\Gamma = 0,36$ e (b) $\Gamma = 1,45$	57
FIGURA 4.2	Curva fluidodinâmica para $\Gamma = 0,72$	58
FIGURA 4.3	Curva fluidodinâmica para $\Gamma = 2,90$	59
FIGURA 4.4	Região de fluidização intensa para $\Gamma = 1,09$	60

FIGURA 4.5	Curva fluidodinâmica para $\Gamma = 4,35$	61
FIGURA 4.6	Velocidade de mínima fluidização para $\Gamma = 0,72$	62
FIGURA 4.7	Velocidade de mínima fluidização completa para $\Gamma = 0,36$	62
FIGURA 4.8	Velocidade de mínima mistura para $\Gamma = 1,09$	63
FIGURA 4.9	Distribuição granulométrica para o ensaio preliminar I	66
FIGURA 4.10	Distribuição granulométrica para o ensaio preliminar II	66
FIGURA 4.11	Grânulos de MCC (ensaio 1)	70
FIGURA 4.12	Grânulos de MCC (ensaio 14)	70
FIGURA 4.13	Gráfico de Pareto para crescimento da partícula	73
FIGURA 4.14	Gráfico de Pareto para o ângulo de repouso	77
FIGURA 4.15	Gráfico de Pareto para índice de aglomerados	79
FIGURA 4.16	Distribuição granulométrica (corrida 1). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição	82
FIGURA 4.17	Distribuição granulométrica (corrida 14). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição	83
FIGURA 4.18	Distribuição granulométrica (corrida 7). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição	84
FIGURA 4.19	Distribuição granulométrica (corrida 8). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição	86

**LISTA DE TABELAS**

Tabela 2.1	Diferenças no comportamento de fluidização	15
Tabela 2.2	Características dos materiais de Wouters e Geldart (1996)	17
Tabela 2.3	Correlações para a estimativa da velocidade mínima de vibrofluidização	25
Tabela 3.1	Informações da composição da maltodextrina Mor-Rex 1910	36
Tabela 3.2	Parâmetros vibracionais	42
Tabela 3.3	Valores das variáveis de entrada para o planejamento $2^{5-1}$	47
Tabela 3.4	Classificação em relação ao ângulo de repouso	51
Tabela 3.5	Fluidez em relação à razão Hausner	53
Tabela 4.1	Velocidades de mínima fluidização sem e com vibração	55
Tabela 4.2	Comparação entre as repetições de dois ensaios preliminares	65
Tabela 4.3	Matriz de experimento e respostas: crescimento da partícula, ângulo de repouso e índice de aglomerados	68
Tabela 4.4	Diâmetro médio de Sauter	69
Tabela 4.5	Efeitos Estimados para crescimento da partícula	73
Tabela 4.6	Massa elutriada das corridas experimentais	75
Tabela 4.7	Efeitos Estimados para o ângulo de repouso	76
Tabela 4.8	Efeitos Estimados para o índice de aglomeração	79
Tabela 4.9	Diâmetro médio de acordo com a equação 3.3	81
Tabela 4.10	Média dos resultados da razão Hausner	87
Tabela 4.11	Razão Hausner para MCC	87

## NOMENCLATURA

A	Amplitude	[m]
$a_1$	Área do tubo	[cm <sup>2</sup> ]
$a_2$	Área do orifício da placa	[cm <sup>2</sup> ]
$a_L$	Área do leito	[m <sup>2</sup> ]
b	Pressão barométrica local	[mmHg]
C	Crescimento da partícula pelo diâmetro médio de Sauter	(%)
$C^{3.3}$	Crescimento da partícula pela equação 3.3	(%)
$d_a^{3.3}$	Diâmetro médio pela equação 3.3 antes da granulação	[μm]
$d_d^{3.3}$	Diâmetro médio pela equação 3.3 depois da granulação	[μm]
$d_p^{3.3}$	Diâmetro médio pela equação 3.3	[μm]
$d_p$	Diâmetro médio da partícula	[μm]
$d^S$	Diâmetro médio de Sauter	[μm]
$d_a^S$	Diâmetro médio de Sauter antes da granulação	[μm]
$d_d^S$	Diâmetro médio de Sauter depois da granulação	[μm]
EL	Coefficiente de colisão estática	[-]
f	Frequência de vibração	[Hz]
g	Aceleração da gravidade	[m/s <sup>2</sup> ]
h	Altura do bico atomizador	[m]
$H_0$	Altura do leito estático	[m]
HR	Razão Hausner	[-]
$I_{Agl}$	Índice de aglomeração das partículas	(%)
j	Razão entre o tempo ascendente e descendente da partícula	[-]
k	Coefficiente da equação de Ower e Pankhurst (1977)	[-]

M	Massa	[kg]
$M_{\text{Aglomerados}}$	Massa de aglomerados	[kg]
MCC	Celulose microcristalina	
$MCC_a$	Celulose microcristalina antes de granular	
$MCC_d$	Celulose microcristalina depois de granular	
$m_p$	Massa da partícula	[kg]
$M_t$	Massa total de partículas introduzidas no leito	[kg]
P	Pressão de atomização	[Psi]
$P_1$	Pressão estática na linha de ar	[cmH <sub>2</sub> O]
Q	Vazão de solução	[ml/min]
$r^2$	Coefficiente de determinação de regressão	[-]
T	Temperatura do ar de entrada no leito	[°C]
U	Velocidade do fluido	[m/s]
$U_{mb}$	Velocidade inicial de bolhas	[m/s]
$U_{mf}$	Velocidade de mínima fluidização	[m/s]
$U_{mm}$	Velocidade de mínima mistura	[m/s]
$U_{mvf}$	Velocidade mínima de vibrofluidização	[m/s]
$U_{mvfc}$	Velocidade de mínima fluidização completa para leitos vibrofluidizados	[m/s]
V	Volume	[cm <sup>3</sup> ]
X	Fração mássica	[-]
W	Vazão mássica	[kg/min]

Gregas

$\alpha$	Coeficiente de descarga	[-]
$\alpha_r$	Ângulo de repouso	[°]
$\Gamma$	Adimensional de vibração	[-]
$\Delta h$	Queda de pressão na placa de orifício	[cmH <sub>2</sub> O]
$\Delta P$	Queda de pressão	[Pa]
$\varepsilon$	Porosidade	[-]
$\xi$	Fator de compressibilidade	[-]
$\rho_{\text{bulk}}$	Densidade aparente aerada	[g/cm <sup>3</sup> ]
$\rho_{\text{tap}}$	Densidade aparente compactada	[g/cm <sup>3</sup> ]
$\nu$	Viscosidade cinemática	[m <sup>2</sup> /s <sup>2</sup> ]
$\omega$	Frequência angular de vibração	[rad s <sup>-1</sup> ]

## CAPÍTULO 1

### INTRODUÇÃO

O leito vibrofluidizado consiste em um leito fluidizado convencional associado a um mecanismo de vibração, o qual tem como objetivo melhorar a qualidade do regime de fluidização de materiais que apresentam dificuldade de processamento como, por exemplo, materiais finos e coesivos que apresentam ampla faixa de distribuição granulométrica, aglomerados, pastosos, etc.

Essa configuração de fluidização oferece algumas vantagens em relação à fluidização convencional, entre elas citam-se: possibilidade de redução da perda de carga e da velocidade de mínima fluidização; economia no consumo de energia na fluidização; maior eficiência comparada ao leito fluidizado convencional no processamento para materiais pastosos; o produto não fica sujeito aos fortes atritos e choques provocados pela “ebulição” do leito fluidizado convencional; a fluidização torna-se mais homogênea de forma que o aglomerado é mantido em movimento, entre outras.

A celulose microcristalina é obtida a partir do processo de hidrólise ácida da celulose. É utilizada como estabilizante, aditivo em alimentos e material reforçador na compressão de fármacos para a formulação do produto final.

A granulação consiste em aumentar o tamanho da partícula por meio da incorporação de materiais ativos e/ou inertes e tem sido aplicada em processos químicos, alimentícios e farmacêuticos para melhorar aspecto, manuseio, compactação e transporte de partículas finas. Nas áreas de alimentos e fármacos, a granulação da celulose microcristalina é uma operação muito importante e deve ser feita antes do processo de recobrimento para evitar perdas por elutriação durante o recobrimento das partículas.

Esse processo, em leitos fluidizados convencionais, apresenta algumas desvantagens como: o aumento na velocidade do ar fluidizante (prejudicando o crescimento da partícula), a formação de muitos canais preferenciais e zonas mortas dentro do leito devido ao excesso de umidade ocasionada pela aspersão do ligante. Em relação à granulação em granuladores de alta mistura, as desvantagens encontradas são: alto custo

para manutenção e operação e dificuldade em controlar e manter os atributos desejados do produto.

A partir do exposto, elaborou-se um projeto que tem a preocupação em contribuir nesse tema, analisando experimentalmente a granulação da celulose microcristalina com aspersão de uma solução aquosa de maltodextrina 35%. O intuito é que a vibração facilite a manutenção do regime de fluidização com a quebra de aglomerados, evite a formação de canais preferenciais e melhore a taxa de circulação das partículas.

As etapas desenvolvidas neste trabalho foram: 1) adaptação da montagem do leito vibrofluidizado, acoplando um sistema de atomização para a solução; 2) estudo da fluidodinâmica das partículas de celulose microcristalina sem adição da solução para avaliar as condições vibracionais e velocidade de mínima vibrofluidização; 3) realização de testes preliminares de granulação para definir as faixas de condições operacionais; 4) execução de um planejamento fatorial de experimentos para as variáveis independentes definidas nos testes preliminares: temperatura do ar de fluidização, vazão de solução granulante, pressão de ar de atomização e parâmetros vibracionais (frequência e amplitude de vibração do distribuidor).

Como resposta, os seguintes atributos de qualidade do produto final foram avaliados: distribuição granulométrica e diâmetro médio de Sauter e escoabilidade (ângulo de repouso e índice de Hausner). Além disso, foi feito o acompanhamento da condição dinâmica durante o processo de granulação.

## CAPÍTULO 2

### REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Com o objetivo de realizar um estudo sobre o processo de granulação da celulose microcristalina em leite vibrofluidizado, serão abordados a seguir, tópicos que fundamentam o processo bem como as características da matéria-prima utilizada no trabalho. É também apresentada uma revisão de literatura sobre o assunto.

#### 2.1 Celulose Microcristalina

A celulose microcristalina (MCC) tem origem através de uma desintegração mecânica, do nível de grau de polimerização de celulose (“*level-off DP*”). “*Level-off DP*” de celulose é um produto resultante de, ou equivalente a, hidrólise da celulose purificada depois de 15 minutos em 2,5N HCl a  $105 \pm 1^\circ\text{C}$ . O termo “*level-off DP*” refere-se ao fato de que a hidrólise neste ponto é interrompida e celulose com grau de polimerização estacionário é então produzida. Neste tipo de hidrólise, as regiões amorfas são atacadas e transformadas, sendo o resíduo final altamente cristalino, com a celulose daí resultante apresentando um grau de cristalinidade extremamente alto (BATISTA, 1965; FERREIRA et al., 1999).

Os grupos hidroxila da celulose têm uma forte afinidade por solventes polares e por solutos que deles se aproximam. Água é um exemplo de um bom agente de inchamento da celulose e outros solventes polares, tais como metanol, etanol, *n*-propanol e outros (FERREIRA et al., 1999).

A celulose microcristalina pode ser preparada a partir de todas as formas naturais de celulose: celulose álcali, celulose regenerada e, também, derivados de celulose com baixo grau de substituição (“*low-DS*”). O material bruto utilizado para o uso comercial da celulose microcristalina pertence a uma classe especial de alta purificação da celulose. O produto é vendido com nome comercial de *Avicel microcrystalline cellulose* (Avicel

celulose microcristalina) – classe alimentícia, farmacêutica e cosmética – e, *Avirin microcrystalline cellulose* (Avirin celulose microcristalina) – classe industrial – ambos registrados pela marca comercial de FMC Corporation (BATISTA, 1965).

A MCC (Figura 2.1) é amplamente utilizada especialmente em alimentos, cosméticos e em indústrias farmacêuticas como: retentor de água; estabilizante de suspensões; controlador característico de fluxo em sistemas utilizados para produtos finais, e como um agente reforçador (aderente) para formulação de tabletes (comprimidos) farmacêuticos. Da celulose de diferentes fontes espera-se que apresente diferentes propriedades de MCC (cristalinidade, conteúdo de umidade, área superficial e estrutura porosa, peso molecular, etc.). As condições de hidrólise também podem afetar as propriedades obtidas da celulose microcristalina (EL-SAKHAWY e HASSAN, 2006).



**Figura 2.1** As três formas básicas de celulose microcristalina: pó, dispersão coloidal, e gel em pasta.

(Fonte: BATISTA, 1965).

Westermarck (1999) realizou a caracterização de partículas, grânulos e comprimidos de celulose microcristalina utilizando os métodos de porosimetria de mercúrio

e adsorção de gás de nitrogênio. Foi observado que houve fragmentação e deformação dos grânulos nos resultados de ambos os métodos. É ressaltado que devido à diferentes intervalos de medidas, bases teóricas diferentes dos dois métodos e comportamento das amostras durante as análises, alguns resultados obtidos não podem ser estritamente comparáveis, porém, os dois métodos juntos podem ser usados na caracterização do comportamento de material em granulação e em comprimidos.

Johansson e Alderborn (2001) realizaram um estudo a respeito do efeito da forma original e a porosidade dos grânulos preparados a partir de celulose microcristalina, para observar o comportamento na compressão deles e na capacidade de formarem tabletes. Neste estudo, os autores concluíram que: para o comportamento dos grânulos para tabletes, independente da sua forma original conservaram sua integridade durante a compressão, a porosidade total do tablete foi praticamente independente da porosidade original e da forma do grânulo antes da compressão e a porosidade aumentou o grau de compressão e forneceu aos comprimidos um estreitamento na estrutura de seus poros, e uma maior resistência à tração. O efeito da porosidade no comportamento de tabletes dos grânulos foi consistente com os efeitos obtidos anteriormente, em 1995, para *pellets* de celulose microcristalina (JOHANSSON et al., 1995; JOHANSSON e ALDERBORN, 2001).

A escolha da celulose microcristalina como o componente para a formação de *pellets* é devido a ser um excipiente essencial no processo de extrusão-esferonização. Como MCC não é solúvel em água ou etanol, mas apenas expande em água, assume-se que as interações de van der Waals são o principal mecanismo interpartícula de ligação e, portanto, definem as propriedades mecânicas dos *pellets* (DREU et al., 2005).

Excipiente é uma substância que serve para ligar ou dissolver outras substâncias que se constituem em um medicamento. Os excipientes farmacêuticos fazem parte de uma formulação com um ou mais agentes não terapêuticos com funções variadas e específicas. A maioria de fármacos administrados em cápsulas requer excipientes para se ter homogeneidade, adequar a velocidade de liberação do fármaco e estabilizar a formulação. Tradicionalmente, os excipientes são vistos como substâncias inertes, mas atualmente, é conhecido que estes podem interagir com o fármaco promovendo alterações químicas e físicas, devendo assim, realizar estudos de pré-formulação (JACKSON et al. 2000; STULZER e TAGLIARI, 2006).

Stulzer e Tagliari (2006) estudaram a compatibilidade entre a fluoxetina (antidepressivo inibidor da recaptação da serotonina) e os excipientes: celulose microcristalina, estearato de magnésio, talco, carboximetilcelulose e manitol, por meio de técnicas de análise térmica (calorimetria exploratória diferencial – DSC e Termogravimetria – TG) e espectroscopia no infravermelho (IV). Os autores verificaram através das técnicas termoanalíticas que houve compatibilidade térmica entre a fluoxetina e os excipientes mais utilizados na fórmula magistral e que na espectroscopia de infravermelho a mistura física de fluoxetina com manitol apresentava alterações de bandas características da fluoxetina, que poderia indicar uma possível incompatibilidade (STULZER e TAGLIARI, 2006).

Silva et al. (2004) estudaram o recobrimento da celulose microcristalina com suspensão polimérica em leito fluidizado e analisaram a eficiência do processo em relação ao crescimento das partículas, ao índice de aglomeração e ao efeito do conteúdo de umidade das partículas antes do leito entrar em colapso. Observaram que o crescimento relativo das partículas foi mais evidenciado para partículas de diâmetro de 355  $\mu\text{m}$ , independente do seu intervalo de tamanho inicial usado. Nos experimentos realizados pelos autores, em que foi utilizado um intervalo de  $-420+210\mu\text{m}$  de tamanho de partículas, foi verificado um grande aumento na quantidade de finos no ciclone e um grande número de aglomerados. O conteúdo de umidade das partículas durante o recobrimento estudado identificou o início do colapso do leito. Para a eficiência do recobrimento, duas condições operacionais atingiram valores acima de 86% de eficiência, porém com aspersão de suspensão intermitente (vazão de solução: 8,9 e 15,9g/min e pressão de atomização de 20 Psi e temperatura do ar de 60°C).

A granulação e a caracterização da celulose microcristalina foram realizadas em leito fluidizado com tubo interno por Cunha et al. (2007) utilizando como agente ligante solução de maltodextrina 35%. No estudo, os parâmetros operacionais vazão de solução granulante, temperatura do ar de fluidização, pressão de atomização e altura do tubo interno em relação a placa distribuidora de gás foram analisados e a suas influências no crescimento da partícula, ângulo de repouso e circularidade foram avaliados. Os autores observaram que a vazão de solução influenciava tanto no processo como na formação do produto e que maiores vazões favoreciam o crescimento das partículas, embora também, ocasionassem o fenômeno da defluidização; as pressões baixas de atomização favoreciam o

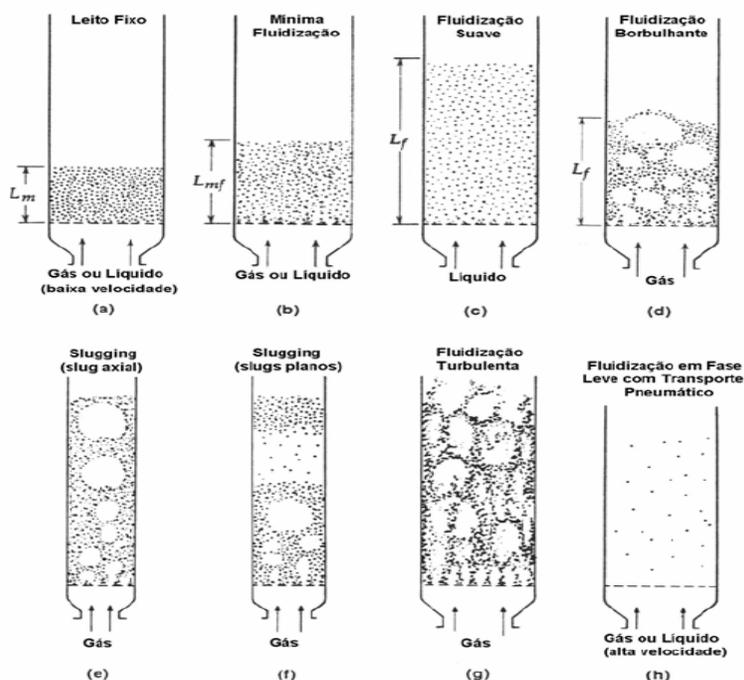
crescimento das partículas; a temperatura afetava a formação dos grânulos de forma que para temperaturas baixas foi encontrado um maior crescimento dos grânulos e o tubo interno movimentou melhor as partículas e minimizou a instabilidade dinâmica propiciando uma uniformidade no recobrimento e grânulos formados.

## 2.2 Fluidização

Fluidização é a operação pela qual partículas sólidas são movimentadas em um estado semelhante a um fluido através da suspensão em gás ou líquido (KUNII; LEVENSPIEL, 1991).

Se um fluido escoar através de um leito de finas partículas, como mostrado na Figura 2.2 (a), em baixas velocidades, o fluido percola através dos espaços vazios entre as partículas estacionárias, constituindo-se em leito fixo. Com o aumento na velocidade, as partículas distanciam-se e movem-se em regiões restritas, configurando-se em leito expandido. A uma velocidade ainda maior, chega-se a um ponto em que todas as partículas estão suspensas pelo escoamento ascendente do gás ou do líquido. Neste ponto, a força de atrito entre as partículas e o fluido contrabalança a força peso das partículas, a componente vertical da força compressiva entre partículas adjacentes desaparece e a queda de pressão através de qualquer seção do leito se iguala a força peso do fluido e das partículas naquela seção. O leito é considerado fluidizado e é referido como um leito de fluidização incipiente ou um leito em mínima fluidização; Figura 2.2 (b). Em sistemas sólido-líquido, um aumento na velocidade acima da mínima fluidização resulta em uma suave e progressiva expansão do leito. Instabilidades em escoamentos turbulentos são amortecidas e permanecem pequenas, e heterogêneas, vazios em grande-escala de líquido, não são observados sob condições normais. Um leito com estas características é chamado de leito fluidizado particulado, leito fluidizado homogêneo ou leito fluidizado suave (*smoothly fluidized bed*) – Fig. 2.2 (c). Geralmente, sistemas gás-sólido se comportam de modo diferente. Com um aumento na velocidade além da fluidização mínima, grandes instabilidades com bolhas e canais de gás são observados. Em velocidades maiores ainda, a agitação torna-se mais violenta e o movimento dos sólidos tornam-se mais vigorosos. Além disso, o leito não expande muito mais do que o seu volume na fluidização mínima. Tal leito

é chamado de leito fluidizado agregativo, leito fluidizado heterogêneo, ou leito fluidizado borbulhante (*bubbling fluidized bed*); Fig. 2.2 (d). Em sistemas gás-sólido, bolhas de gás coalescem e crescem quando se elevam, e em leitos de pequeno diâmetro elas podem eventualmente tornarem-se grandes para espalharem-se por toda coluna. No caso de partículas finas, elas escoam suavemente ao redor da parede, aumentando o vazio de gás. Isto é chamado de *slugging* (*axial slugs*), conforme Fig. 2.2 (e). Para partículas grossas, a parte do leito acima da bolha é suspenso, como um pistão. Eclodem partículas que descem do *slug* que, finalmente, desintegra. Em seguida forma outro *slug* e esta forma oscilatória é repetida. Isto é chamado de *flat slug*; Fig. 2.2 (f). Quando partículas finas são fluidizadas em uma velocidade de gás suficientemente alta, a velocidade terminal dos sólidos é excedida, a superfície superior do leito desaparece e, ao invés de bolhas, observa-se um movimento de sólidos e vazios de gás de diferentes formas e tamanhos. Este é o leito fluidizado turbulento ou transporte em fase densa; Fig. 2.2 (g). Com um novo aumento na velocidade do gás, sólidos são carregados do leito pelo gás. Neste estado tem-se um dispersivo-, diluído-, ou leito fluidizado com fase fina com transporte pneumático de sólidos; Fig. 2.2 (h) (KUNII; LEVENSPIEL, 1991).



**Figura 2.2 Regimes de fluidização.**

(Fonte: KUNII e LEVENSPIEL, 1991).

De acordo com Erdész e Mujumdar (1986), as mais importantes características fluidodinâmicas do leito fluidizado convencional são: a velocidade de mínima fluidização ( $U_{mf}$ ); a queda de pressão no leito em mínima fluidização  $\Delta P_{mf}$ ; a porosidade inicial do leito  $\varepsilon_0$ , que é constante da expansão para fluidização heterogênea até o início da fluidização (então o leito expande ( $\varepsilon > \varepsilon_0$ ), a porosidade de mínima fluidização e a queda de pressão no leito torná-se quase constante em  $\Delta P_{mf}$ ). Estes parâmetros de fluidização são geralmente provenientes de medidas simples.

A Figura 2.3 ilustra a variação de queda de pressão em função da vazão de gás em um leito fluidizado convencional, onde é observado também o ponto da velocidade de mínima fluidização.



**Figura 2.3 Esquema da queda de pressão em função da vazão de ar para um leito fluidizado convencional.**

A aplicação industrial do leito fluidizado data de 1926, onde teve sua aplicação comercialmente significativa no primeiro processo em grande-escala da gaseificação do carvão. O equipamento também foi utilizado para obtenção da gasolina por outras frações de petróleo, gás natural e através da síntese de gases. Em operações físicas, pode-se citar o uso extensivo em trocadores de calor, por causa de sua capacidade única para o rápido transporte de calor e manutenção da temperatura uniforme no recobrimento de objetos

metálicos com revestimento plástico; na solidificação de uma fusão para fazer grânulos; na secagem de sólidos; no recobrimento de objetos e crescimento de partículas; adsorção e biofluidização, sendo esta última uma das mais interessantes aplicações da fluidização (KUNII e LEVENSPIEL, 1991).

Recobrimento ou granulação em leito fluidizado é um processo pelo qual grânulos ou partículas recobertas são produzidos por aspersão de um ligante como solução, suspensão, ou fundido dentro do leito fluidizado de partículas. O processo de leito fluido expandido recebeu considerável atenção na indústria farmacêutica. Entretanto, outros processos industriais como alimentício, agroquímico, corantes e outras indústrias químicas, têm adotado esta tecnologia para enfocar o aumento das partículas. Algumas das razões para o aumento por recobrimento e aglomeração são os seguintes: para melhorar as propriedades de fluidez, manejo, e características de compressão das partículas iniciais; para produzir a distribuição de tamanho de partículas desejado ou, a geometria do produto; para modificar as densidades *bulk* e da partícula; para melhorar aparência, gosto, ou odor das partículas ou protegê-las do oxigênio, umidade, luz ou agentes ativos incompatíveis; e, para controlar o tempo de dissolução (HEMATI et al., 2003).

O processo de granulação em leito fluidizado pode ser representado por duas etapas consecutivas, que são continuamente repetidas. A primeira etapa é a umidificação das partículas fluidizadas pelo líquido borrifado, e aglomeração de partículas por líquidos ligantes. A segunda é a formação de sólidos ligados pela secagem do líquido ligante existente. Portanto, o processo de granulação em leito fluidizado pode ser considerado como uma sucessão de um processo de umidificação seguido pelo processo de secagem (PONT et al., 2001).

As desejáveis vantagens em se trabalhar com leito fluidizado convencional, como a isotermicidade, alta transferência de calor e massa, e boa mistura das partículas, podem sofrer um revés para algumas desvantagens quando se estiver operando na presença de líquidos borrifados: a) pelo fenômeno da defluidização, devido à formação de grandes aglomerados. Isto é um problema sério que deve ser considerado para o processo de recobrimento e aglomeração porque quando ocorre, o comportamento do leito fluidizado pode mudar drasticamente; b) pela obtenção de qualidades indesejáveis no produto granulado, como distribuição de tamanho e resistência mecânica fora de especificação. Às vezes, a qualidade do produto pode ser melhorada pela classificação do tamanho, por

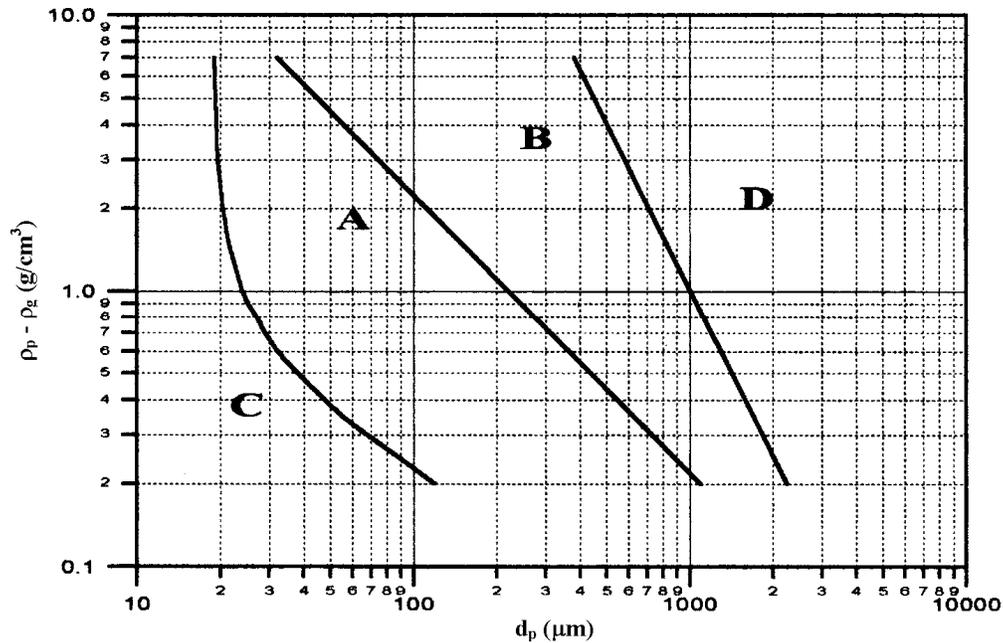
exemplo, pelo peneiramento; c) outro problema é o fenômeno da atrição, que resulta na perda do agente recobridor depositado e então na eficiência de operação. Por outro lado, um bom controle do processo de aglomeração do leito fluidizado é difícil. Umidificação, secagem e mistura das partículas tomam lugar simultaneamente no mesmo equipamento (HEMATI et al., 2003).

### 2.2.1 Tamanho de Partículas

A maioria dos pós possui capacidade de expandir quando o gás os atravessa numa direção ascendente, situação na qual são ditos fluidizados. Há uma grande variedade de pós de acordo com a natureza das partículas sólidas caracterizadas por sua composição química e física, e por sua distribuição de tamanho. A fim de compreender o comportamento dos pós, deve ser considerada, também, a fase de gás (RIETEMA, 1984).

Quando fluidizadas, as partículas começam a expandir em um momento chamado de mínima ou incipiente fluidização ( $U_{mf}$ ). Nesse momento, a queda de pressão sobre o leito de partículas se iguala ao peso total do leito em sua seção transversal. Baseado em vários modos de expansão das partículas quando fluidizadas, Geldart (1973) propôs uma classificação de partículas, a partir de observações empíricas (RIETEMA, 1984).

Comumente utilizada, a classificação de Geldart (1973) separa as partículas em 4 tipos: C, A, B e D. Segundo esse autor, o comportamento das partículas sólidas em leitos fluidizados depende em grande parte de uma combinação da média do tamanho das partículas e da diferença de densidades (sólido – fluido). Os tipos de partículas são descritos abaixo e na Figura 2.4 estão representadas as classificações feitas pelo autor para a fluidização com o ar (GELDART, 1986).



**Figura 2.4 Diagrama de Geldart (GELDART, 1986).**

**Grupo C** – Este grupo é representado por partículas coesivas e muito finas. Normalmente, a fluidização de tais partículas é muito difícil. As partículas elevam-se como um “bloco de sólidos” em leitos de pequenos diâmetros, enquanto em leitos de grandes diâmetros, canais preferenciais são formados do distribuidor à superfície do leito, não havendo fluidização dos sólidos. A dificuldade surge por causa das forças interpartículas que são maiores do que as forças que o fluido pode exercer na partícula.

**Grupo A** – Os sólidos deste grupo são caracterizados por possuírem ampla faixa de fluidização, que é entre a velocidade de mínima fluidização  $U_{mf}$  e a velocidade em que se iniciam as bolhas,  $U_{mb}$  gerando alta expansão do leito e alta mistura do gás. São partículas cujo diâmetro encontra-se na faixa de  $20 < d_p < 100 \mu\text{m}$  e são relativamente leves,  $\rho_p < 1,4 \text{ g/cm}^3$ . Quando se tem uma velocidade do gás acima de  $U_{mb}$ , a fluidização é borbulhante sendo caracterizada por bolhas com movimentos ascendentes mais rápidos que o gás e por bolhas que aparecem após o distribuidor dividem-se e coalescem quando sobem em direção à superfície do leito.

**Grupo B** – As partículas deste grupo englobam a maioria dos sólidos que contêm um intervalo de tamanho médio e de densidade de:  $60\mu\text{m} < d_p < 500\mu\text{m}$  quando  $\rho_p = 4\text{g/cm}^3$  ou  $250\mu\text{m} < d_p < 100\mu\text{m}$  quando  $\rho_p = 1\text{ g/cm}^3$ . Em contraste com as partículas do grupo A, as forças interpartículas são desprezíveis e as bolhas começam a se formar no início da fluidização. A expansão do leito é pequena e uniforme e o diâmetro das bolhas aumenta com a altura do leito e a velocidade do gás em excesso ( $U-U_{mf}$ ).

**Grupo D** – Partículas de grande diâmetro e/ou densas pertencem a este grupo. A velocidade do gás na fase densa é alta e a mistura de sólidos é relativamente baixa. O contato do tipo leito de jorro é favorecido e as bolhas têm movimentos ascendentes mais lentos que o gás e quando atingem o diâmetro do leito, observa-se o *slugging* ou pistão.

### 2.2.2 Fluidização de Partículas Coesivas

Em 1984, houve um aumento no interesse a respeito do comportamento fluidodinâmico das partículas do grupo C (partículas coesivas), devido ao crescente interesse de processos industriais que fazem uso destas (GELDART et al., 1984).

Partículas finas são em geral difíceis de fluidizar. Esta dificuldade está relacionada com as forças interpartículas que são maiores do que as forças transmitidas às partículas pela fluidização do gás. As forças interpartículas causam a aglomeração destas partículas e a formação de cavidades nos aglomerados. A aglomeração e as cavidades favorecem a formação de canais por onde o gás atravessa sem fluidizar as partículas finas (BAERNS, 1966).

Se uma partícula é muito coesiva, boa fluidização é difícil. Mas há diferentes maneiras de superar essa dificuldade e melhorar a qualidade de fluidização dessa partícula. Um método que pode ser utilizado é a adição de um fluxo condicionador, que consiste na adição de partículas pequenas ( $0,01$  a  $1\mu\text{m}$ ), e age pela redução entre a área de contato e o leito de partículas, diminuindo a coesão delas. Outra possibilidade é o uso de agitação mecânica ou, ainda, a aplicação de vibração. Esses métodos de melhoramento da fluidização são aplicados em processos de secagem, recobrimento, granulação e nitruração

do aço (processo no qual a superfície absorve nitrogênio em lugar de carbono) (MARRING et al., 1994).

A secagem em leito vibrofluidizado é considerada uma das mais úteis para partículas úmidas, já que a vibração pode melhorar a fluidez do leito, e isto torna mais fácil a fluidização com velocidades do ar mais baixas. O melhoramento considerável na fluidez das partículas úmidas em leitos vibrofluidizados ajuda a superar as forças interpartículas (CHEN et al., 1991).

Isso pode ser observado, em alguns materiais, como MgO e CaO, onde as vibrações por si só, não são suficientes para romper estas forças de atração, e o fluxo de ar simultaneamente é necessário. A maneira que este efeito influencia na taxa de secagem depende do tamanho da partícula e da quantidade de umidade do material. Em todos os casos, a formação de “torrões” e aglomerados é reduzida por causa da vibração (GUPTA e MUJUMDAR, 1980a).

Observações na mudança de comportamento dos leitos fluidizados devido à adição de líquidos sugerem que a adição do líquido nas partículas do grupo B possa, em geral, causar uma transição para o comportamento do grupo A e eventualmente para o comportamento do grupo C (McLAUGHLIN e RHODES 2001).

Molerus (1982) sugeriu que este comportamento dependia da razão das forças coesivas pelas forças de arrasto agindo nas partículas individualmente. O autor desenvolveu aproximações empíricas para relacionar as diferenças no comportamento da fluidização com as forças de adesão entre as partículas (WORMSBECKER e PUGSLEY, 2008).

A Tabela 2.1 apresenta a interpretação de Molerus (1982) em relação ao comportamento fluidodinâmico na transição entre os grupos de partículas.

**Tabela 2.1 Diferenças no comportamento de fluidização.**

<i>Transição entre</i>	<i>Esclarecimento</i>
A → C	A movimentação livre das partículas é reprimida pelo domínio das forças de coesão de partículas do grupo C quando comparadas ao grupo A.
B → A	A separação do grupo B do grupo A é definido pela negligência das forças coesivas em comparação com as forças de arrasto, no comportamento de fluidização das partículas do grupo B.
D → B	É definido pelo fato da pressão dinâmica do agente fluidizante exceder um valor distinto baseando-se no tamanho da partícula e diferença de densidade, no momento de fluidização mínima das partículas do grupo D.

Seville e Clift (1984) reportaram que a adição de pequenas quantidades de um líquido não volátil para materiais do grupo B, pode causar mudanças no comportamento fluidodinâmico, deslocando-se através do grupo A para o grupo C. Os autores mostraram que essa observação é consistente com a análise de Molerus referente ao papel das forças interpartículas na determinação das características fluidodinâmicas.

McLaughlin e Rhodes (2001) também realizaram um estudo similar, onde sustentaram o conceito de que a transição entre o comportamento entre os grupos B, A e C ocorre em uma razão específica das forças interpartículas pela de arrasto (do fluido). Essa razão para as fronteiras AC e BA foi de 0,6 a 1,07 e 0,02 a 0,06, respectivamente.

Altas razões de Hausner (HR) são produzidas por partículas coesivas. Foi encontrado que para razões acima de 1,4, as partículas exibem comportamento do grupo C, enquanto para razões abaixo de 1,25 claramente pertencem ao grupo A (MARRING et al., 1994).

A razão Hausner é uma simples medida tipicamente utilizada para caracterizar a escoabilidade de sólidos em circulação. Trata-se da relação entre as densidades *tap* (densidade aparente compactada,  $\rho_{tap}$ ) e *poured bulk* (densidade aparente aerada,  $\rho_{bulk}$ ), calculada conforme a Equação 2.1.

$$HR = \frac{\rho_{tap}}{\rho_{bulk}} \quad 2.1$$

A densidade aparente aerada demonstra a intensidade das forças interpartículas, uma vez que a densidade *tap* as minimiza através da compactação do material. Esta razão é, portanto, uma medida indireta das forças interpartículas que existem entre as partículas no meio estático. Partículas com alta razão Hausner (significativamente maiores que 1) exibem perda do empacotamento e são, portanto, estabilizadas devido a maiores forças interpartículas, uma vez que, as partículas quando possuírem forças fracas terá razão menor que a unidade (HAUSNER, 1967; WORMSBECKER e PUGSLEY, 2008).

Geldart (1984) percebeu que a razão entre a densidade aparente compactada ( $\rho_{tap}$ ) e a densidade aparente aerada ( $\rho_{bulk}$ ) era um indicador útil para determinar se uma partícula era ou não coesiva. Segundo o autor, há uma alta coesão entre as partículas para HR superior a 1,4 e quando fluidizadas comportam-se como pertencentes ao grupo C. A transição entre A e C ocorre para HR entre 1,25 e 1,4. E as partículas que, quando fluidizadas, apresentarem comportamento similar às do grupo A, B, ou D apresentam HR menor que 1,25.

Silva Moris (2002) descreve uma das formas de se obter  $\rho_{bulk}$  e  $\rho_{tap}$  a partir de recipiente de volume conhecido. A densidade *tap* pode ser determinada despejando-se em um recipiente uma massa conhecida M e, em seguida, um excesso de material é adicionado. O recipiente é submetido a um ciclo de batidas e o excesso do material removido do seu topo, e então, pesado novamente. A densidade *bulk* pode ser obtida pelo derramamento lento de uma amostra de massa conhecida, M, em um recipiente de volume V conhecido sem perturbação ou alteração do empacotamento. Atualmente existem equipamentos específicos que medem esses valores, como por exemplo, *Hosokawa Microns*.

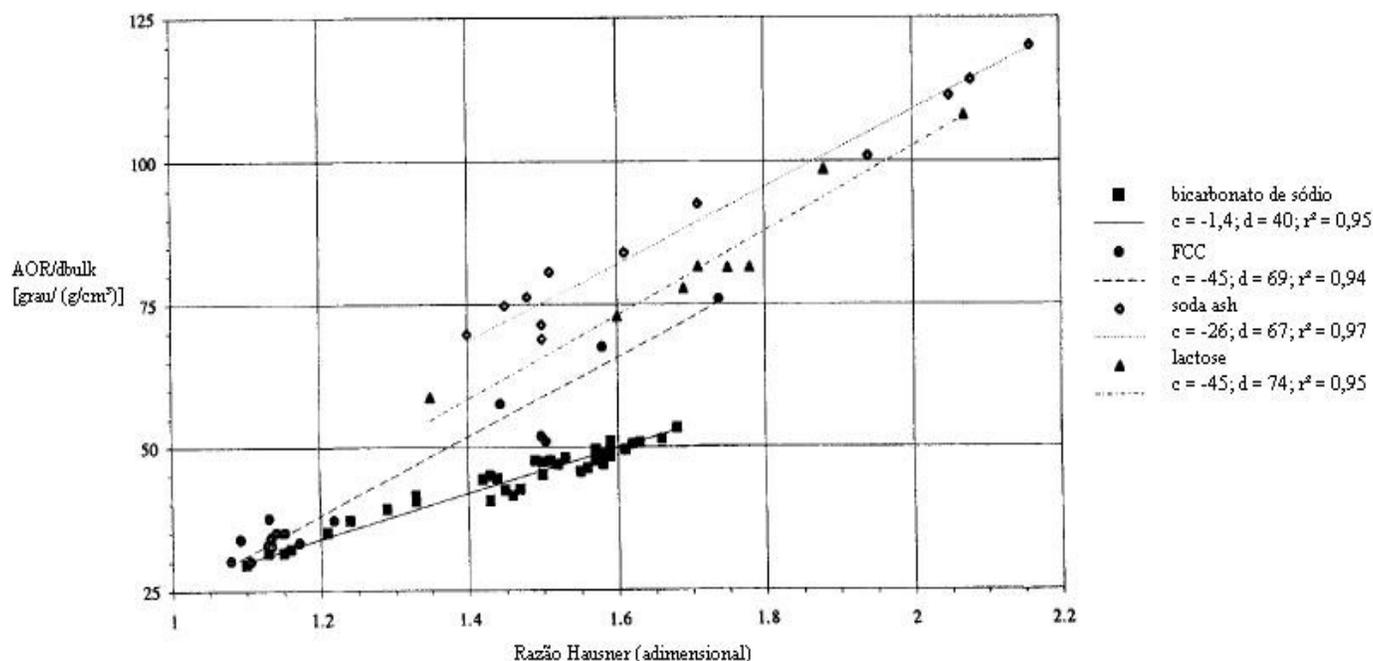
Wounters e Geldart (1996) relacionaram as medidas do ângulo de repouso com a razão Hausner para partículas de bicarbonato de sódio, FCC (fluido de craqueamento catalítico), carbonato de sódio (soda ash) e lactose. As características dos materiais estão apresentadas na Tabela 2.2.

**Tabela 2.2 Características dos materiais de Wouters e Geldart (1996).**

Tipo de Material	Diâmetro médio <sup>1</sup> ( $\mu\text{m}$ )	Intervalo de HR <sup>2</sup> (adimensional)	Classificação de Geldart <sup>3</sup>
Bicarbonato de sódio, comercial	113 – 31	1,10 – 1,68	A-A/C-C
FCC, industrial	77 – 8	1,07 – 1,74	A-A/C-C
Soda ash, comercial	77 – 30	1,40 – 2,16	C
Lactose	50 – 20	1,35 – 2,07	A/C-C

<sup>1</sup>diâmetro superfície/volume; <sup>2</sup>HR – Razão Hausner; <sup>3</sup>Partículas do grupo A:  $HR < 1,25$ ; Partículas do grupo C:  $HR > 1,4$ ; A/C: Partículas com valores intermediários de HR e com comportamento de partículas do grupo A e C.

Com os resultados experimentais, os autores plotaram um gráfico (Figura 2.5) da razão: ângulo de repouso e densidade *bulk* aerada (ângulo de repouso ponderado – “*weighted angle of repose*”) em função da razão Hausner, e encontraram quatro formas lineares na distribuição dos pontos no gráfico, com bons coeficientes de determinação ( $r^2$ ), variando de 0,94 a 0,97.

**Figura 2.5 Razão ângulo de repouso/ densidade bulk em função da razão Hausner.**

Onde, AOR é o ângulo de repouso medido em graus,  $\delta_{bulk}$  é a densidade *bulk* (livre de empacotamento) medida em  $g/cm^3$ ,  $c$  e  $d$  são os coeficientes da função linear  $f(x) = c + d \cdot x$  e  $r^2$  é o coeficiente de determinação de regressão.

Kuipers et al. (1996) estudaram a fluidização da fécula de batata (partículas pertencentes ao grupo C) em leito vibrofluidizado agitado. As vibrações impostas ao sistema juntamente com o gás, mostraram bons resultados na eliminação dos canais preferenciais somente na parte inferior do leito. Com aplicação simultânea da vibração e da agitação no leito aerado, os canais preferenciais e aglomerados foram eliminados, obtendo uma fluidização homogênea.

Para materiais pastosos e aglomerados, a estrutura do leito, no trabalho de Malhotra e Mujumdar (1985), apresentou-se bastante irregular na fluidização, com a formação de canais preferenciais. Sem vibração, o leito movia-se frequentemente como um pistão e momentaneamente acarretava em oscilações bruscas na queda de pressão. Para garantir a uniformidade do leito nos experimentos realizados, no início das corridas experimentais, vibração foi aplicada para proporcionar uma expansão e obter um estado inicial uniforme de estrutura do leito.

## **2.3 Leito Vibrofluidizado (LVF)**

### **2.3.1 Características Gerais**

O leito vibrofluidizado (LVF) de partículas sólidas é uma modificação no leito fluidizado convencional (LFC), onde energia de vibração é transferida para o leito de partículas por um gerador mecânico. A vibração pode ser imposta pelo equipamento inteiro ou apenas pela placa distribuidora de gás (SILVA MORIS e ROCHA, 2003).

Uma das mais antigas aplicações comerciais do leito vibrofluidizado data de antes de 1938, quando Allis-Chalmers operou uma unidade para a secagem do minério de molibdênio. Em 1980, houve um crescimento no interesse da utilização de vibrações mecânicas para melhorar o processo de leito fluidizado em diversos processos como a

calcinação, reações exotérmicas gás-sólido, recobrimento de polímeros, secagem e resfriamento de sólidos granulares entre outros (GUPTA e MUJUMDAR, 1980a).

O uso de vibrações mecânicas impostas aos leitos fluidizados visa aliviar as chamadas irregularidades encontradas na fluidização convencional, tais como a formação de bolhas e canais no interior do leito além de facilitar o controle da distribuição do tempo de residência pela manipulação da amplitude e frequência de vibração (DANIELSEN e HOVMAND 1980; GUPTA e MUJUMDAR, 1980a; DELLA TONIA e FREIRE, 1989).

Há, também, outras vantagens em relação ao leito fluidizado convencional como: a velocidade de mínima fluidização e a queda de pressão na fluidização incipiente é menor para o leito vibrofluidizado, portanto a energia consumida é reduzida significativamente e boas condições de transferência de calor e massa podem ser asseguradas devido à possibilidade de uma dependência do controle da velocidade do gás e dos parâmetros de vibração. Além daquelas ditas anteriormente, em relação à quantidade de ar reduzida e a agitação mecânica facilitando a quebra dos “torrões” (GUPTA e MUJUMDAR, 1980a; SILVA MORIS e ROCHA, 2003).

No entanto, a aplicação e o uso de equipamentos com vibração vêm sendo limitados devido à necessidade de tecnologia apropriada e do uso de sistemas de vibração versáteis para cada equipamento. Também existem poucos dados que consideram o efeito da vibração em vários processos relacionados com as propriedades das partículas (SILVA MORIS, 2002).

### 2.3.2 Regimes de Operação

Bratu e Jinescu (1971) definiram três regimes de operação de sistemas vibracionais, baseados em observações visuais, que dependem da grandeza da componente vertical da aceleração vibracional. São eles:

- Estado Vibrado: quando  $\frac{A\omega^2}{g} < 1$ , o leito comporta-se como um leito

fluidizado convencional, e as vibrações ajudam a melhorar a estabilidade e homogeneidade do leito.

- Leito vibrofluidizado: quando  $\frac{A\omega^2}{g} \approx 1$ , a vazão de gás e as vibrações contribuem para a fluidização e o comportamento do leito é influenciado pela grandeza relativa de ambos.

- Leito fluidizado vibrado: quando  $\frac{A\omega^2}{g} > 1$ , o comportamento do leito é influenciado pelas forças vibracionais que tendem a suspender o leito com a vibração. Nestas circunstâncias o ar é usado somente como um meio para transferência de calor e massa.

Onde  $A$ ,  $\omega$  ( $2\pi f$ ),  $f$  e  $g$  são: amplitude (m), frequência angular ( $\text{rad s}^{-1}$ ) e frequência (Hz) de vibração, e aceleração gravitacional ( $\text{m/s}^2$ ), respectivamente.

Em Daleffe (2005) encontram-se outras duas formas de classificação propostas por Strumillo e Pakowski (1980) e por Pakowski et al. (1984). Na primeira, Strumillo e Pakowski (1980) dividiram os leitos vibrados baseados na velocidade mínima de fluidização ( $U_{mf}$ ) para o leito submetido a qualquer intensidade de vibração. Classificando como:

- Leito vibrofluidizado: leito vibrado com aeração externa forçada para velocidades do ar ( $U$ ) menores que a velocidade mínima de fluidização ( $U_{mf}$ ).
- Leito fluidizado vibrado: leito submetido à vibração com aeração externa forçada para  $U > U_{mf}$ .

E, na segunda, Pakowski et al. (1984) basearam-se nas faixas das condições operacionais e estabeleceram que:

- Leito vibrado: para  $\Gamma > 1$  e sem escoamento de ar.
- Leito vibrofluidizado: para  $\Gamma > 1$  e  $U < U_{mf}$ .
- Leito fluido vibrado: para qualquer  $\Gamma$  e  $U > U_{mf}$ ; onde  $\Gamma$  é denominado adimensional de vibração.

Para o estudo do comportamento dinâmico dos leitos submetidos à vibração vertical, deve-se quantificar a energia vibracional ao qual o sistema está submetido. A amplitude ( $A$ ) e a frequência ( $f$ ) de vibração são usualmente os parâmetros controladores da energia vibracional transferida para estes leitos (ÉRDEZ, 1990).

O adimensional de vibração ( $\Gamma$ ), que é definido pelas Equações 2.2 e 2.3,

$$\Gamma = \frac{A.(2.\pi.f)^2}{g} \quad 2.2$$

$$\Gamma = \frac{A\omega^2}{g} \quad 2.3$$

é a forma mais utilizada na literatura para quantificar a energia vibracional inserida no leito. Muitas vezes, é chamado de parâmetro vibracional e pode ser interpretado fisicamente como sendo a relação entre a aceleração média vibracional exercida sobre o sistema e a aceleração gravitacional (ÉRDEZ, 1990; DALEFFE, 2005).

### 2.3.3 Fluidodinâmica do Leito Vibrofluidizado

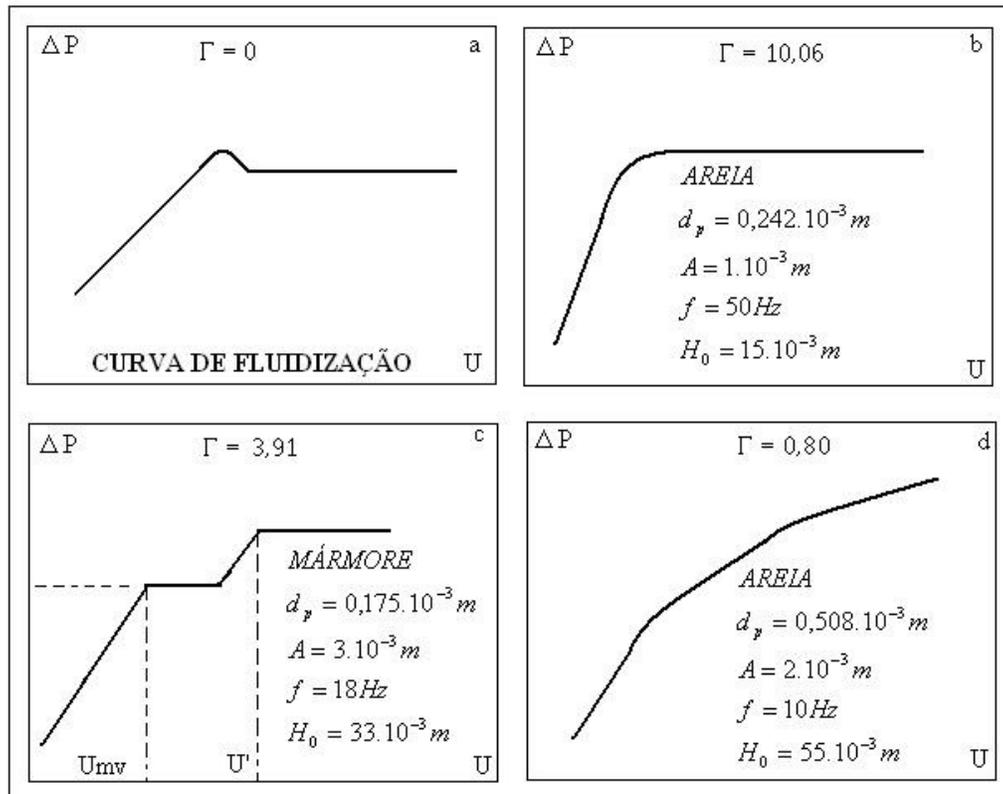
O comportamento fluidodinâmico de leitos vibrados em condição de fluidização é afetado principalmente pelas propriedades físicas das partículas (tamanho, forma, características coesivas e adesivas) e pelo adimensional de vibração ( $\Gamma$ ). É também verificado com os diversos estudos experimentais que a queda de pressão e a velocidade de mínima fluidização são menores em leitos vibrofluidizados em comparação com o convencional e que a baixa intensidade de vibração ( $\Gamma < 1$ ) geralmente diminui a porosidade do leito (SILVA MORIS, 2002).

Jinescu (1971) observou que a homogeneidade do leito melhorava como consequência das vibrações. Morse (1955) já havia observado o mesmo comportamento, mas para leitos de pequenas partículas. Experimentos de Mushtayev et al. (1973) indicaram

que a homogeneidade do leito começava a se degenerar quando a aceleração vibracional excedia a  $4g$   $\left[ \left( \frac{A\omega^2}{g} \right) > 4 \right]$ .

A homogeneidade do leito e a sua estabilidade são provavelmente decorrentes do fato de que a alta frequência de vibração (10 – 50 Hz) impede a coalescência das bolhas, resultando em um leito mais uniforme (GUPTA e MUJUMDAR, 1980a).

Em seus estudos, Strumillo e Pakowski (1980) apresentaram algumas curvas que seriam características de leitos vibrofluidizados, e são apresentadas na Figura 2.6. A forma destas curvas é dependente da relação das forças vibracionais e da dinâmica imposta pela percolação do fluido através do leito (DALEFFE, 2005).



**Figura 2.6** Curvas fluidodinâmicas: (a) Leito fluidizado convencional; (b,c,d) leito vibrofluidizado.

(Fonte: DALEFFE, 2005).

Nos gráficos,  $\Delta P$  e  $U$  são a queda de pressão no leito (em mmH<sub>2</sub>O) e velocidade superficial do ar no leito (em m/s), respectivamente;  $d_p$  é o diâmetro médio da partícula;  $A$  e  $f$  são amplitude e frequência de vibração;  $H_0$  altura do leito estático;  $U_{mv}$  e  $U'$  é a velocidade média de vibração e a velocidade de fluidização.

### 2.3.3.1 Velocidade de mínima fluidização

Em um leito fluidizado convencional, a transição de leito fixo para fluidizado é facilmente perceptível em quase todos os casos, ocorrendo em uma pequena faixa de velocidade ou vazão de ar. Usualmente,  $U_{mf}$  (velocidade de mínima fluidização) é estimada pela interseção de duas retas na curva  $\Delta P \times U$  (queda de pressão em função da velocidade do ar). Uma é tangente à curva de leito fixo, e a outra, tangente à curva de leito fluidizado (Figura 2.7).

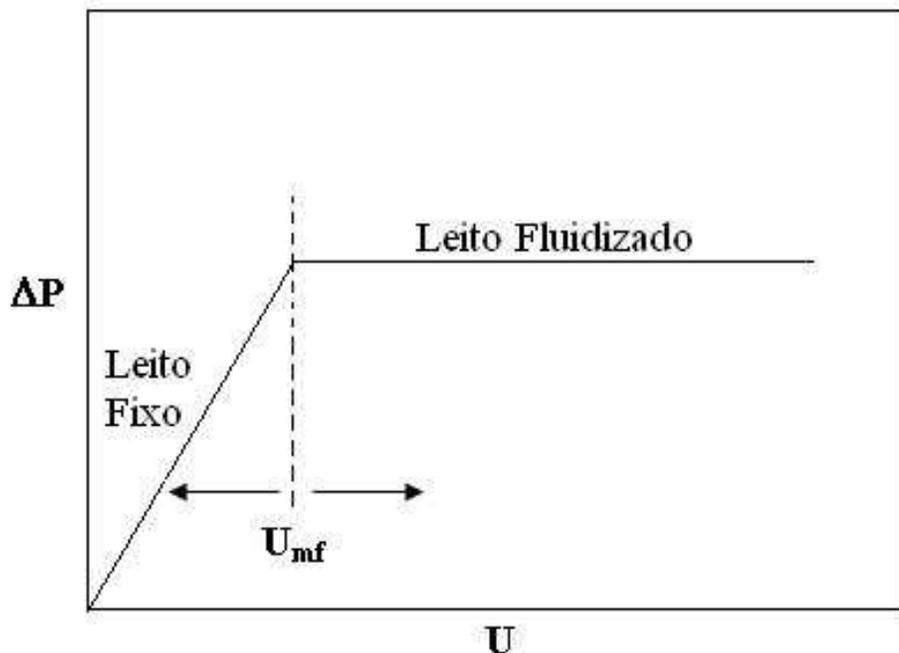


Figura 2.7 Esquema do método para estimar  $U_{mf}$  em leito fluidizado convencional.

Gupta e Mujumdar (1980b) adotaram o procedimento de determinar  $U_{mf}$  pelo método da interseção das retas na curva experimental da queda de pressão em função da velocidade superficial do ar em leito vibrofluidizado. Os autores inferiram que a metodologia aplicada não foi adequada para esse caso, e que uma nova definição para velocidade de mínima fluidização em leitos vibrofluidizados deveria ser aplicada. O conceito de velocidade de mínima mistura ( $U_{mm}$ ), definida como a velocidade do ar em que as partículas sólidas no leito começam a se movimentar e misturar, determinada a partir de observações visuais, foi então introduzido. O problema é que a metodologia proposta depende do observador e da existência de um sistema que permita observações visuais. (DALEFFE e FREIRE, 2004).

Existe, também, dificuldade na determinação da  $U_{mf}$  quando partículas inertes são revestidas com uma pasta, porque a presença de um líquido afeta a dinâmica da partícula no leito. O princípio do leito vibrofluidizado pode ser usado como uma estratégia para melhorar a qualidade de fluidização de materiais coesivos e irregulares, e evitar problemas como canais preferenciais, defluidização e escoamentos *slug* e, além disso, melhorar a cinética de secagem comparada a um leito fluidizado. Os leitos vibrofluidizados têm uma maior fluidez na fluidização mínima e também, uma tendência para reduzir discontinuidades mantendo uma taxa de transferência de calor praticamente constante (ABUAF e GUTFINGER, 1974; SILVA MORIS e ROCHA, 2003; DALEFFE e FREIRE, 2004).

Uma série de trabalhos foi realizada para determinar a velocidade mínima de vibrofluidização ( $U_{mvf}$ ). Segundo Érdész (1990), algumas destas correlações são encontradas com frequência na literatura, porém não apresentam condições experimentais completas utilizadas para a sua obtenção ou validação. A Tabela 2.3 apresenta algumas equações empíricas, baseadas em diferentes conjuntos de dados.

**Tabela 2.3 Correlações para a estimativa da velocidade mínima de vibrofluidização.**

<i>Autor</i>	<i>Correlação</i>	<i>Grupo</i> <sup>*</sup>	<i>Faixa de <math>\Gamma</math></i>
Bratu e Jinescu (1972)	$U_{mvf} = U_{mf} \cdot \left[ 1 - \frac{1 + EL}{2\pi j} \cdot \Gamma \right]$	A,B	0-15 <sup>1</sup>
Mushtayev et al. (1973)	$U_{mvf} = 6,9 \cdot \left( \frac{\rho_p}{\rho_g} \right)^{0,63} \cdot \left( \frac{1}{\nu} \right)^{0,33} \cdot d_p^{0,88} \cdot (1 - c \cdot \Gamma)$ Sendo $\ln c = 0,7 \cdot 10^{-3} \cdot f^{1,28} \cdot \sqrt{H_0 / d_p}$	B	0-30 <sup>2</sup>
Ringer e Mujumdar (1984)	$U_{mvf} = U_{mf} \cdot \sqrt{1 - \Gamma / \Gamma_{LVF}}$ $\Gamma_{LVF} = \Gamma \cdot \left[ \frac{1}{1 - \Delta P \cdot a_L / m_p \cdot g} \right]$	B,D	0-3 <sup>3</sup>
Erdész e Mujumdar (1986)	$U_{mvf} = 0,8 U_{mf} \cdot \left( \frac{\Delta P_{mf}}{\Delta P_{mvf}} \right)^{2/3}$	B,D	0-13,4 <sup>4</sup>

\*Classificação de Geldart; <sup>1</sup>  $0,0 < A < 3,0 \times 10^{-3}$  m e  $0 < f < 35$  Hz; <sup>2</sup>  $0,5 \times 10^{-3} < A < 3,0 \times 10^{-3}$  m e  $0 < f < 60$  Hz; <sup>3</sup>  $0,0 < A < 4,25 \times 10^{-3}$  m e  $0 < f < 14$  Hz; <sup>4</sup>  $A = 1,85 \times 10^{-3}$  m e  $0 < f < 42$  Hz.

Onde: EL é o coeficiente de colisão elástica, j é a razão entre o tempo ascendente e descendente da partícula,  $\rho_p$  é a densidade da partícula ( $\text{kg/m}^3$ ),  $\rho_g$  é a densidade do gás ( $\text{kg/m}^3$ ),  $\nu$  é a viscosidade cinemática ( $\text{m}^2/\text{s}^2$ ),  $H_0$  é a altura do leito estático (m),  $d_p$  é o diâmetro da partícula (m),  $m_p$  é a massa da partícula (kg), g é a aceleração da gravidade ( $\text{m/s}^2$ ),  $a_L$  é a área do leito ( $\text{m}^2$ ),  $\Delta P_{mf}$  e  $\Delta P_{mvf}$  são a queda de pressão do leito na mínima fluidização e mínima vibrofluidização (Pa).

A aplicação comercial do leito vibrofluidizado tem aumentado desde a década de 90 para a secagem econômica de partículas apresentando ampla extensão de tamanho e partículas coesivas de difícil fluidização (SILVA MORIS e ROCHA, 2006).

## 2.4 Granulação

### 2.4.1 Definição

Desde que a “arte industrial” da granulação foi descoberta em vários tipos de indústrias relativamente independentes, as sobreposições na linguagem e o uso de termos imprecisos podem confundir. Muitas palavras são usadas para uma variedade de processos de aumento da partícula como aglomeração, granulação, peletização e *balling*. Em geral, são usadas indiferentemente e o conjunto esferoidal de suas partículas é chamado de aglomerados, grânulos, *pellets* e *balls*. A granulação e aglomeração são termos geralmente usados para descrever o processo de formação da partícula ou do seu aumento de tamanho. Podem ser definidas como um processo de produção em “tamanho otimizado”, praticamente esférico de produtos a partir de finos, fundidos ou suspensões (KADAM, 1991).

O processo usa um líquido ligante para formar pontes interpartículas e há agitação da massa, partícula – líquido, para promover a dispersão líquida e o crescimento do grânulo. Esta categoria de processo inclui leitos fluidizados, panelas e tambores giratórios e misturadores granuladores (LITSTER e ENNIS, 2004).

### 2.4.2 Por que granular?

Litster e Ennis (2004) listaram diversas razões para realizar granulação, como: produzir formas estruturais úteis, eliminar perdas ou risco no manuseamento de pós, melhorar a aparência do produto, melhorar as propriedades de escoamento, aumentar a densidade *bulk* de armazenamento, controlar a dispersão e solubilidade, controlar porosidade e razão superfície – volume, melhorar a permeabilidade, criar misturas não segregadas dos ingredientes das partículas, entre outros.

Durante a granulação, as partículas ou grânulos maiores são produzidos através da adesão de partículas menores mediante pontes líquidas. A solidificação do líquido ligante através da secagem permite a formação dos grânulos sólidos. Os objetivos para esta

operação são melhorar propriedades de fluidez e fornecer facilidade de manuseio. Tal processo é bastante utilizado em diversas indústrias desde farmacêuticas a fertilizantes e indústrias de processamento de minerais (PONT et al., 2001).

As propriedades dos grânulos que são amplamente estudadas na literatura são: média geométrica do tamanho do grânulo, distribuição de tamanho, ângulo de repouso, densidade livre e tap (*loose density* e *tap density*) e perdas na secagem. Em relação à cinética da granulação, existem poucos trabalhos reportados na literatura por causa da falta de técnicas apropriadas (HU et al., 2008).

### **2.4.3 Granulação Úmida**

Materiais coesivos também podem ser processados por compressão ou encapsulação. Esses materiais podem ser preparados por três métodos gerais: granulação úmida, granulação seca e compressão direta. A compressão direta (ou compactação direta) não envolve diretamente o processo de granulação, desde que os materiais já possuam as propriedades requeridas para a compactação. Essencialmente, os ingredientes da formulação são misturados e compactados dentro de comprimidos. A granulação seca representa a técnica onde o acúmulo de partículas é formado através da operação de compactação. É especialmente útil para materiais que podem ser sensíveis ao calor ou a umidade. Os princípios associados com a granulação seca são os mesmos que aqueles associados com a compactação ou compressão de tabletes. O método mais usado é a granulação úmida. Em geral, esse processo envolve adição de um líquido granulante às partículas secas, misturando o líquido até boa distribuição e os grânulos estiverem formados (KADAM, 1991).

O aumento de tamanho por granulação úmida é amplamente utilizado em tratamentos industriais de partículas. Este processo consiste na aglomeração das partículas com um ligante, seguido pela secagem para remover o solvente e obter grânulos secos. A secagem dos grânulos, que pode fornecer uma variedade de tamanho da partícula, pode ser o produto final ou um intermediário de outros processos, como na formação de compactados e tabletes (OULAHNA, 2003).

A granulação úmida em misturador de alta mistura e em leito fluidizado, da maioria de partículas não coesivas, foi amplamente estudado na literatura e nas indústrias, no último século. Experimentos para investigar os efeitos das variáveis de equipamento, de processo e produtos ou formação relacionada às variáveis nas propriedades do produto final, já foram realizados. Assim, a tecnologia de granulação, especificamente, granulação com aspersão em leito fluidizado, é bem documentada na literatura, onde um ligante é injetado dentro do leito fluidizado através de um bico atomizador na forma de gotas pequenas (CHEN et al., 2009).

Um ligante é um material adicionado para provocar a adesão de partículas individuais durante a operação da granulação além de aumentar o tamanho da partícula no misturador de pós e produzir um material de boa escoabilidade. Age como um adesivo ou uma cola. Por muitos anos, as gomas naturais como acácia e tragacanto, e outros materiais naturais como o amido, gelatina e sucrose serviram como agentes ligantes. Exceto pelo amido, estes materiais tem perdido lugar para vários polímeros como: polivinilpirolidona (PVP), e derivados da celulose como a metilcelulose (MC), hidroxipropil metilcelulose (HPMC), hidroxipropilcelulose (HPC), carboximetilcelulose de sódio (CMC) e etilcelulose (KADAM, 1991).

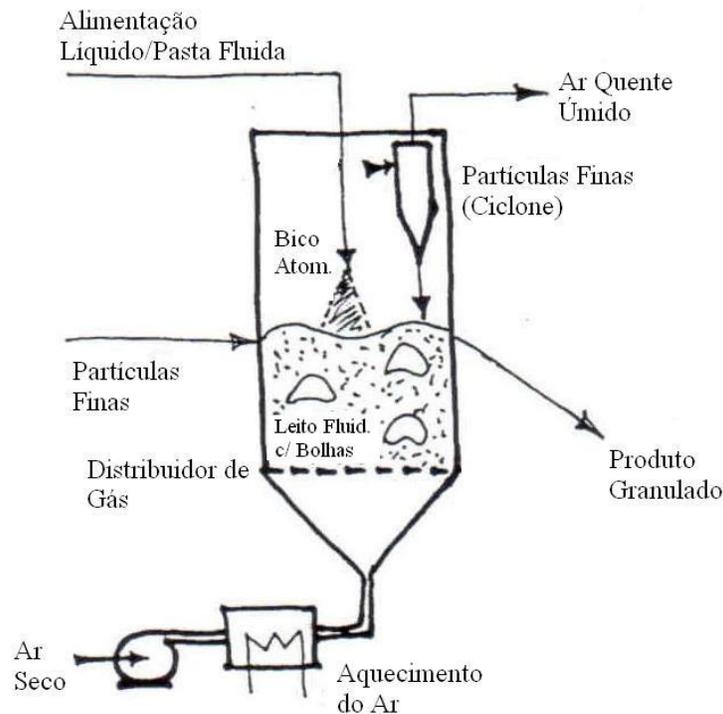
#### **2.4.4 Granulação em leito fluidizado**

A tecnologia de processamento por fluidização, embora em amplo uso pelas indústrias desde 1940, encontrou sua aplicação na indústria farmacêutica com o trabalho pioneiro de Wurster na década de 1950. Em 1959, o autor aplicou esta técnica para recobrir partículas farmacêuticas suspensas num fluxo de ar por meio de um líquido granulante (KADAM, 1991).

Nos granuladores fluidizados (leitos fluidizado e jorro), as partículas são colocadas em movimento pelo ar, e não por agitação mecânica. As áreas de aplicação incluem fertilizantes, indústria química e agrícola, granulação farmacêutica e uma variedade de processos de recobrimento (LITSTER e ENNIS, 2004).

O recobrimento em leito fluidizado é utilizado para mascarar odor e gosto ruim, proteger ativos contra meios reativos como oxigênio, luz e umidade e melhorar a escoabilidade das partículas (CHEN et al., 2008).

No processo de granulação em leito fluidizado, o líquido granulante, contendo um agente ligante, é borrifado dentro do leito de partículas fluidizado aquecido. O processo pode ser representado por dois passos consecutivos, que são repetidos continuamente. O primeiro passo é a umidificação das partículas fluidizadas por um líquido borrifado, e aglomeração das partículas pela solução ligante. O segundo passo é a formação de sólidos aglomerados pela secagem da solução ligante. Portanto, o processo de granulação em leito fluidizado pode ser considerado como uma sucessão de processo de umidificação seguido de um processo de secagem. A Figura 2.8 mostra os elementos essenciais de um leito fluidizado granulador (PONT et al., 2001).



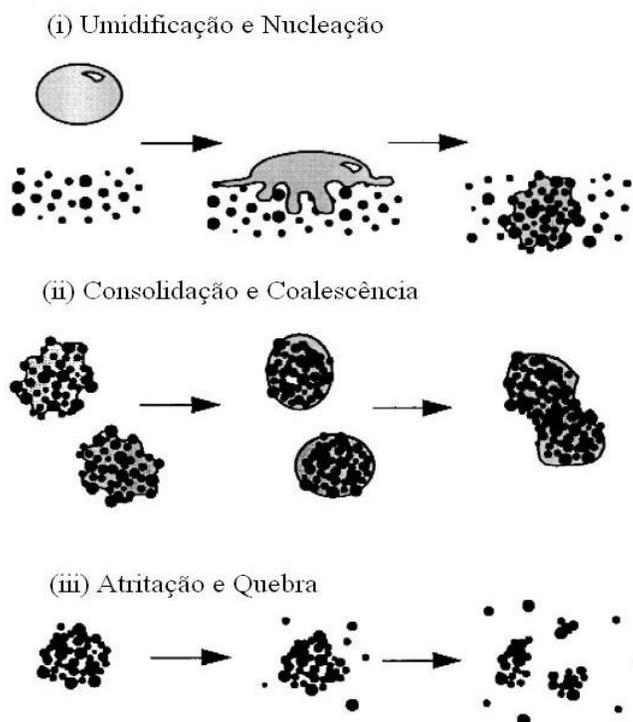
**Figura 2.8 Granulação em leito fluidizado.**

(Fonte: LITSTER e ENNIS, 2004).

Algumas vantagens e desvantagens em se usar granuladores do tipo leito fluidizado são listadas por Litster e Ennis (2004). Entre as vantagens estão: granulação e secagem simultâneas dispensam secador adicional; produção de pequenos poros dos grânulos (menores de 1 mm) a partir de pós; altas taxas de transferência de calor e massa, entre outras. As desvantagens são: fenômeno da defluidização se as variáveis não são bem controladas; alto custo operacional para movimentação do ar; os atritos podem ser altos e equipamento de recobrimento de pós torna-se necessário; operação pobre com finos e partículas coesivas.

A granulação em leito fluidizado é um processo complicado que envolve múltiplas variáveis de processo, e para formação dos grânulos, apresenta três processos simultâneos: (1) umidificação e nucleação, (2) consolidação e crescimento, e (3) quebra e atrição. Estas ações ocorrem no bico atomizador ou próximas dele (LITSTER, 2003; LITSTER e ENNIS, 2004; HU et al., 2008).

O comportamento da granulação tem sido tradicionalmente descrita em termos de diferentes mecanismos. Predizer quantitativamente os atributos dos grânulos é difícil. Além disso, a demarcação entre esses mecanismos depende do corte do tamanho entre o grânulo e o material não granular, que depende da medida de interesse e habilidade para contar as pequenas partículas. Dessa forma, torna-se mais comum ver a granulação como uma combinação de etapas (Figura 2.9) (IVESON et al., 2001).



**Figura 2.9 Mecanismos de aglomeração.**

(Fonte: PERRY, 1997).

#### 2.4.4.1 Formação dos grânulos

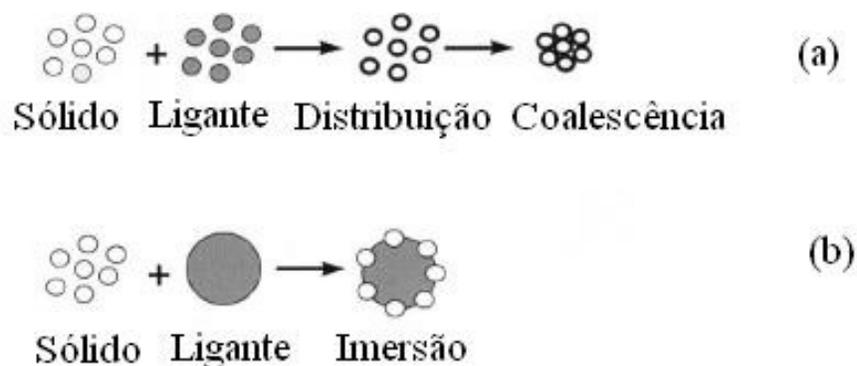
Como já dito anteriormente, um ou mais mecanismos podem estar envolvidos na formação dos grânulos pelo processo em leito fluidizado. Segundo Kadam (1991), alguns destes mecanismos estão relacionados com a: formação de pontes líquidas pela solução ligante entre partículas mantidas juntas devido à tensão de superfície na interface líquido/ar e a pressão de sucção hidrostática na ponte; pontes formadas devido à cristalização de substâncias dissolvidas durante a secagem; e estruturas formadas pelo endurecimento do ligante adicionado nas partículas primárias aglomeradas como processo de secagem.

Contudo, esta revisão abordará 3 etapas do processo que são importantes na determinação do comportamento da granulação úmida, conforme descrito por Iveson et al. (2001), umidificação e nucleação, consolidação e crescimento e quebra e atritação, estes processos segundo os autores são conhecidos, e prediz teoricamente o efeito das propriedades de formulação, tipo de equipamento e condições operacionais na granulação.

## A. Umidificação e Nucleação

A nucleação é um importante processo quando o tamanho da gota do bico atomizador é grande comparada ao tamanho da partícula no leite. Neste caso, a taxa de formação do núcleo e a distribuição de tamanho estão diretamente relacionadas com a distribuição do tamanho da gota. A nucleação é importante quando o tamanho da partícula inicial no leite é muito pequeno (grupo A ou C). O ideal é que, o tamanho da gota deva ser pequeno e a distribuição de tamanho da gota estreita. Gotas líquidas grandes causam a formação de um núcleo maior, que seca lentamente. Estes núcleos podem sedimentar no leite fluido causando seu esfriamento rápido (defluidização). Para obter pequenas gotas com uma distribuição de tamanho estreita, dois fluidos são sempre empregados no bico atomizador (LITSTER e ENNIS, 2004).

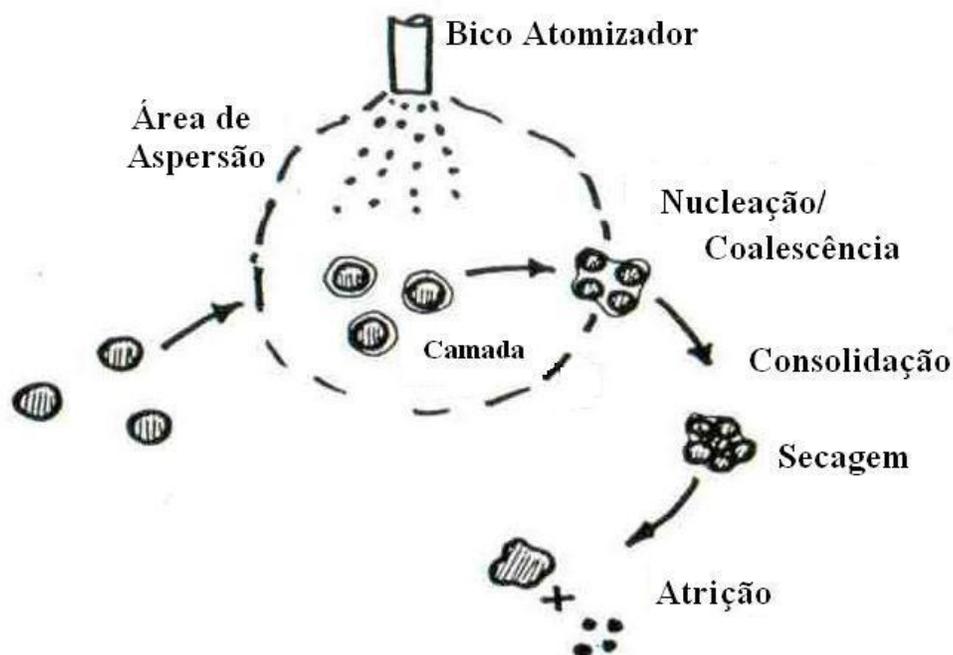
Schaefer e Mathiesen (1996) propuseram dois diferentes mecanismos de nucleação, dependendo da relação de tamanho das gotas com as partículas. Se a gota é grande comparada com as partículas, a nucleação ocorre por imersão das partículas menores dentro da gota (Figura 2.10b). Esta produz um núcleo com poros saturados. Nucleação com gotas relativamente pequenas ocorrerá por distribuição das gotas na superfície das partículas (Figura 2.10a), e então dará início a coalescência.



**Figura 2.10 Mecanismos de nucleação. (a) Mecanismo de distribuição. (b) Mecanismo de imersão.**

(Fonte: IVESON et al., 2001).

Se uma partícula é significativamente maior do que o tamanho da gota líquida, quando atravessar a área de aspersão (Figura 2.11), as gotas que colidem com a partícula formarão uma camada líquida ao redor dela (Camada – *Layering*). O crescimento por coalescência é relativamente rápido, ou na ordem de 100  $\mu\text{m}/\text{h}$  (NIENOW e ROWE, 1985 em Litster e Ennis, 2004).



**Figura 2.11 Mecanismos de crescimento.**

(Fonte: LITSTER e ENNIS 2004).

## **B. Consolidação e Crescimento**

A consolidação tem um efeito forte na porosidade final dos grânulos produzidos por coalescência. Portanto, a consolidação é também importante em uma série de propriedades relacionadas com a porosidade incluindo tensão, densidade *bulk* e dispersabilidade. Em leitos fluidizados, o mecanismo ocorrerá em um curto intervalo de tempo. Uma vez que o grânulo seca, nenhuma consolidação adicional ocorre. Por esta razão, grânulos de leitos fluidizados são normalmente mais porosos do que os grânulos de misturadores e tambores (*tumbling e mixer granulators*) onde nenhuma secagem ocorre.

Isto é verdade onde a coalescência é o mecanismo dominante de crescimento (Litster e Ennis, 2004).

Quando um grânulo colide com outros grânulos ou com a superfície do equipamento, estes são gradualmente consolidados, reduzindo seu tamanho e sua porosidade. A porosidade controla a força do grânulo, quanto maior, mais fraco e friável será. Estes grânulos quebram e originam pós durante o seu manuseio, fato que não é desejável na maioria dos casos. Contudo, para muitos produtos é desejável que o grânulo seja poroso para que tenha rápida dispersão e dissolução (IVESON et al., 2001).

### **C. Quebra e Atrição**

Devido a velocidades relativamente altas no leito fluidizado, atrição pode ser um mecanismo significativo para criar finos que serão elutriados do leito. A taxa de atrito depende da magnitude da força aplicada e da força dos grânulos, estes atritarão devido a colisões com outros grânulos e as paredes internas do leito. O movimento dos grânulos no leito é determinado pelo movimento das bolhas e, portanto varia com a velocidade excessiva do gás (LITSTER e ENNIS, 2004).

A formulação de propriedades e de variáveis operacionais, que controla a quebra do grânulo (secos ou úmidos), é conhecida e os modelos para prever o seu comportamento de quebra estão disponíveis na literatura (IVESON et al., 2001).

## CAPÍTULO 3

### MATERIAIS E MÉTODOS

#### 3.1 Materiais

##### 3.1.1 Matéria-Prima

O material utilizado para o processo de granulação no leito vibrofluidizado é a celulose microcristalina MICROCEL MC – 500, fornecida pela empresa Blanver Farmoquímica Ltda. O material apresenta aspecto de um pó não fibroso, é inodoro, sólido a temperatura ambiente, de cor branca, não inflamável, com temperatura de auto ignição a 340°C e pH na faixa de 5,5 a 7,0. A celulose microcristalina é insolúvel em água e parcialmente solúvel em álcalis. Possui uma densidade aparente não compactada, segundo o fabricante, variando de 0,40 a 0,50 g/cm<sup>3</sup>. De acordo com as especificações da empresa, o lote utilizado apresentou para essa propriedade um valor de 0,45g/cm<sup>3</sup>.

O material foi estocado em local seco e mantido fechado para manter as propriedades originais da matéria-prima adquirida sem alterações significativas para o desenvolvimento do trabalho.

##### 3.1.2 Solução Granulante

As maltodextrinas possuem ampla aplicação comercial na indústria alimentícia como agente ligante, recobridor, portador de sabor, fragrâncias e óleos em cosméticos. São definidas como sendo hidrolisados de amido que consistem em unidades de  $\alpha$ -D-glicose, unidas principalmente por ligações glicosídicas (1,4) e possuem fórmula geral  $[(C_6H_{10}O_5)_nH_2O]$ . Apresentam uma ampla distribuição de massa molecular entre polissacarídeos e oligossacarídeos e estão disponíveis comercialmente, na forma de um pó

branco ou soluções concentradas (DOKIC et al., 1997; KENNEDY et al., 1995; TAKEITI, 2007).

Todos os hidrolisados são definidos pelo valor equivalente de dextrose (DE), que é a medida da redução do conteúdo de açúcar calculado pela porcentagem de dextrose em base seca. Esta medida é realizada sob condições bem definidas e é uma estimativa aproximada da similaridade de componentes de interesse da glicose e está diretamente ligada ao número médio do peso molecular. O DE da maltodextrina tem, contudo, se mostrado ser inadequado para prever o desempenho do produto em várias aplicações. O valor de DE do amido é zero, enquanto o da glicose é 100. Para a maltodextrina, a variação é no intervalo de 2 a 20 (CHRONAKIS, 1998; AVALTRONI, 2004).

O material usado para a preparação da solução ligante foi a maltodextrina Mor-Rex 1910®, fornecido pela empresa CORNPRODUCTS Brasil – Ingredientes Industriais Ltda. A maltodextrina utilizada apresenta-se em pó branco com DE (dextrose equivalente) entre 9,0 e 12,0, possui baixa higroscopicidade, é solúvel a frio e com viscosidade e aspecto iguais à sacarose. A composição aproximada em açúcares em base seca está apresentada na Tabela 3.1 disponível na ficha técnica do material.

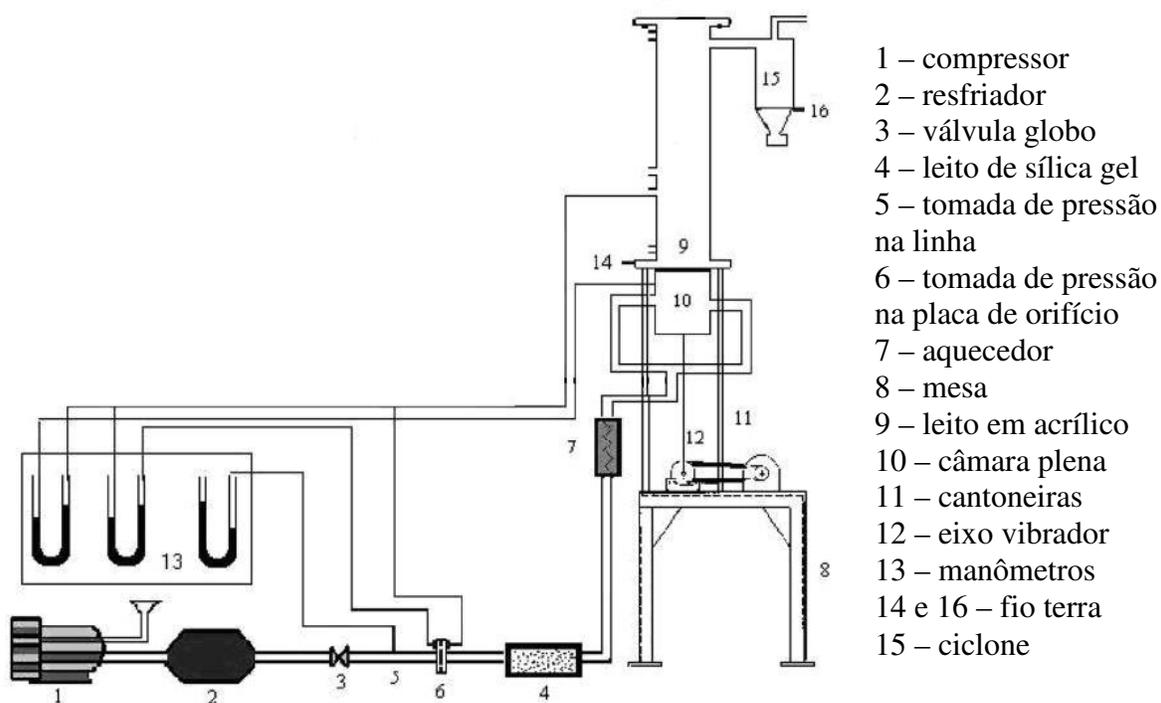
**Tabela 3.1 Informações da composição da maltodextrina Mor-Rex 1910.**

<i>Composição</i>	<i>% em base seca</i>
Dextrose	1
Maltose	2
Outros açúcares	97

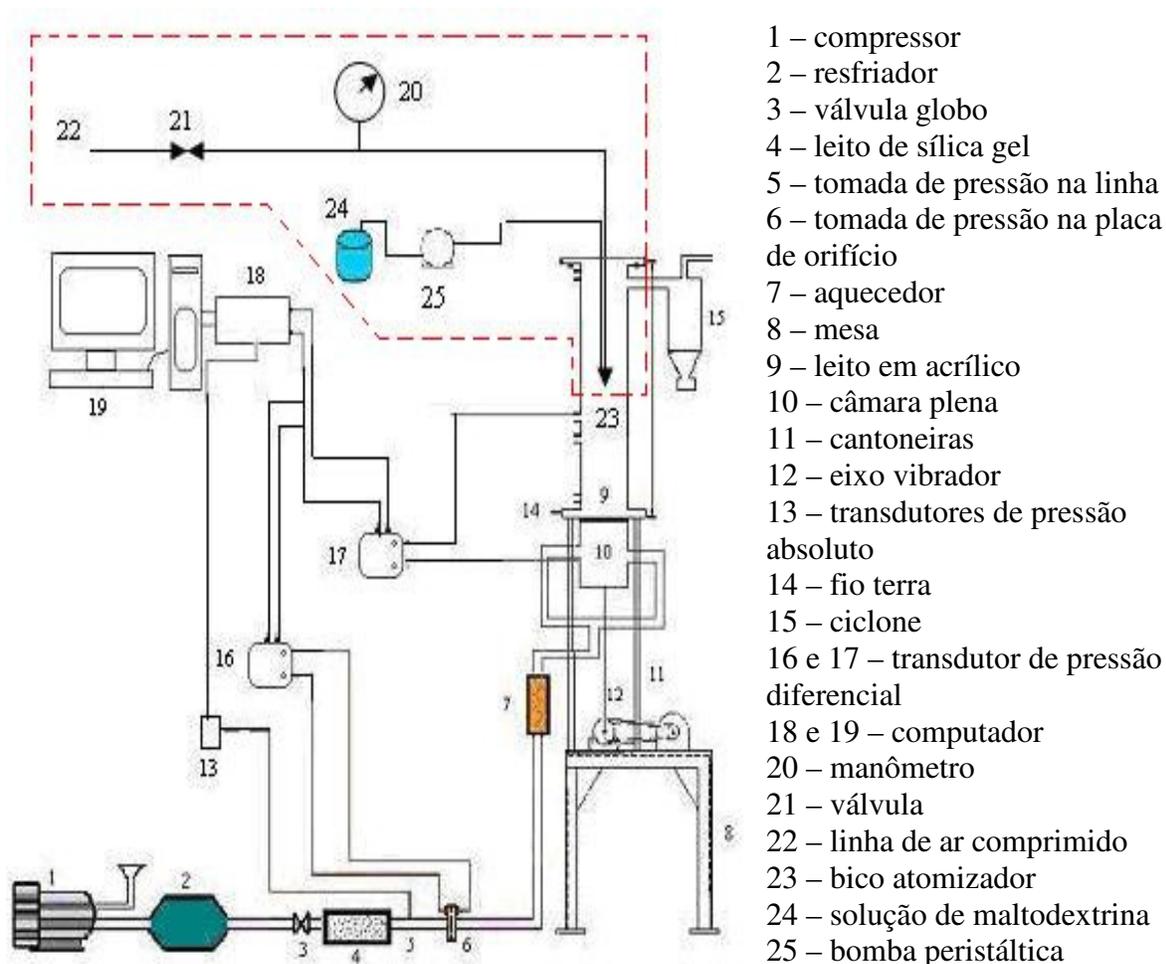
Entre suas aplicações, a maltodextrina pode ser utilizada em adoçantes de mesa, balas mastigáveis, barras de cereais e proteína, bebidas isotônicas, energéticas e à base de soja, maionese e molhos cremosos, misturas instantâneas, pratos prontos congelados, refrescos em pó, sorvetes, suplementos para atletas, entre outros. Para aromas e essências, a maltodextrina funciona como veículo de encapsulamento e de secagem, segundo informações da empresa fornecedora do material.

### 3.2 Equipamento experimental

O equipamento experimental utilizado para o processo de granulação da celulose microcristalina foi o leito vibrofluidizado, projetado e desenvolvido por Silva Moris (2002). A configuração experimental montada pelo autor, apresentada na Figura 3.1, foi modificada para a condução deste trabalho pela incorporação do sistema de atomização, como mostra a Figura 3.2. O sistema de aquisição de dados foi utilizado para os experimentos de fluidodinâmica do material no leito sem aspensão de solução e para os ensaios preliminares de granulação.



**Fig. 3.1 – Esquema do Leito Vibrofluidizado (SILVA MORIS, 2002).**



**Fig. 3.2 – Leito vibrofluidizado com sistema de atomização (demarcado).**

O leito vibrofluidizado é constituído por um leito de tubo cilíndrico em acrílico (9) de 0,10m de diâmetro interno e 0,50m de altura. O leito é fixado por cantoneiras (11) à mesa (8) de 500x600x800mm, que é fixada ao chão para deixar firme o sistema de vibração. O vibrador, do tipo excêntrico, e o motor elétrico encontram-se sobre a mesa. O ar é fornecido por um soprador (1), tem sua vazão ajustada por uma válvula globo (3), passa por um leito de sílica gel (4) e atravessa uma placa de orifício (6) cuja queda de pressão é medida. A linha também dispõe de um sistema de resfriamento (2) com aletas de alumínio e tubos de cobre, onde o fluido refrigerante é a água para operar o sistema à temperatura ambiente. O aquecedor elétrico é composto por um conjunto de resistências (7) e encontra-se após o leito de sílica. Em (5) e (6) encontram-se os pontos de tomada de pressão na linha do ar de fluidização e na placa de orifício. Esses pontos são conectados aos transdutores de pressão, absoluto e diferencial (13 e 16), onde os valores são acompanhados

on line na tela do computador (19) pelo software LABVIEW 6.0. A vazão do ar é determinada pela Equação 3.1, encontrada em Ower e Pankuhurst (1977).

$$W = k_1 \cdot \xi \cdot \alpha \cdot a_2 \cdot \sqrt{\frac{1}{1-m^2} \cdot (\Delta h) \cdot \frac{b}{k_2 + T}} \quad 3.1$$

Onde:

W = vazão mássica (kg/min)

$$\xi = 1 - \frac{\beta \cdot \Delta h}{P_1 + b} \text{ (fator de compressibilidade);}$$

$P_1$  = pressão estática na linha de ar (cmH<sub>2</sub>O);

b = pressão barométrica local (mmHg);

$$\beta = 0,3041 + 0,0876 \cdot m - 0,116 \cdot m^2 + 0,4089 \cdot m^3;$$

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

$$m = \frac{a_2}{a_1}; \quad a_1 = \frac{\pi \cdot D^2}{4} \text{ (área do tubo, em cm}^2\text{)}, \quad a_2 = \frac{\pi \cdot d^2}{4} \text{ (área do orifício, em cm}^2\text{);}$$

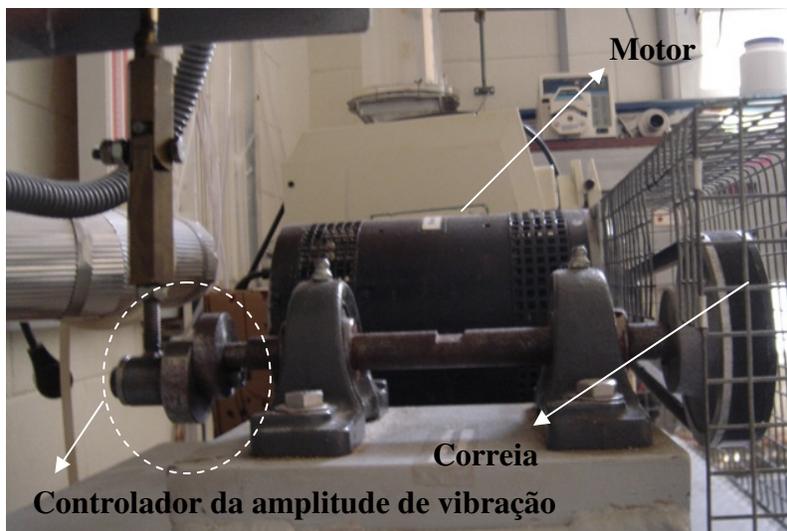
$\Delta h$  = queda de pressão na placa de orifício (cmH<sub>2</sub>O);

T = temperatura do ar na entrada do leito (°C);

Quando a temperatura e a altura barométrica são dadas em °C e mmHg, os valores de  $k_1$  e  $k_2$  são respectivamente 0,0573 e 273.

A câmara plena de aço inoxidável (10) auxilia a distribuição do ar antes do leito de partículas. O sistema vibracional é composto pelo eixo vibrador (12), o qual opera em uma faixa de amplitude de 0 a 0,04m e a frequência de vibração foi acompanhada durante os experimentos com o auxílio de um tacômetro óptico, modelo Photo Tachometer da EXTECH instruments, que trabalha nas faixas de 5 a 1000 rpm ou de 1000 a 100000 rpm a em uma distância de 50 a 150 mm dependendo da luz ambiente. O sistema vibracional

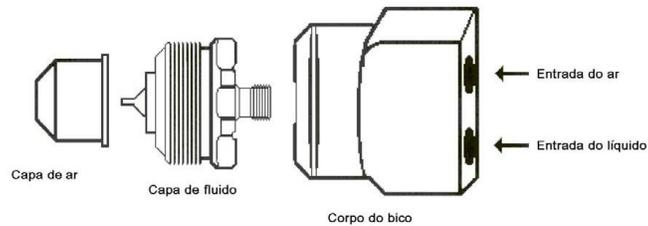
composto do motor, da correia e do controlador de amplitude de vibração, está ilustrado na Figura 3.3.



**Figura 3.3 Sistema vibracional.**

A queda de pressão no leito é acompanhada através de um transdutor de pressão diferencial (17), com um dos terminais conectado à câmara plena e o outro acima do leito de partículas, próximo à saída do leito, e utilizando um sistema de aquisição de dados o software LABVIEW 6.0, a uma taxa de amostragem de 400 Hz. Em (14) encontra-se o fio terra e em (15) o ciclone para coletar partículas elutriadas. Em (22) tem-se a linha de ar comprimido, onde o ar passa com a vazão definida pela abertura da válvula (21). A pressão do ar de atomização é medida por um manômetro (20) e em (23) tem-se o bico atomizador de duplo fluido para aspersão da solução granulação, a qual é mantida sob agitação constante durante o experimento, e está armazenada em (24).

A solução de maltodextrina é conduzida até o bico atomizador por uma bomba peristáltica (25) Masterflex®, modelo L/S 7523-20. O líquido granulante ao entrar em contato com a corrente de ar comprimido é atomizado e produz um jato de aspersão de gotículas da solução. O bico de atomização está ilustrado na Figura 3.4, e consiste em um conjunto de capa de ar, de capa de fluido e de corpo do bico.



**Figura 3.4 Sistema de atomização.**

(Fonte: COSTA, 2003).

Para realizar as corridas, conforme o planejamento estatístico dos experimentos, não foi possível utilizar o sistema de aquisição de dados, devido ao requerimento do sistema por outro centro de pesquisa, já estabelecido antes do início da etapa experimental deste trabalho. Desta forma, as quedas de pressão e pressão estática na linha foram medidas em manômetros de tubo em U. Em termos de precisão, essa mudança não altera os resultados de forma significativa.

### 3.3 Metodologia

#### 3.3.1 Ensaios Fluidodinâmicos

Os testes fluidodinâmicos foram realizados com o objetivo de verificar a influência dos parâmetros vibracionais no comportamento da celulose microcristalina antes da granulação em leito vibrofluidizado. Com os testes fluidodinâmicos determina-se a velocidade de mínima vibrofluidização e a faixa de velocidade de operação para desenvolver o planejamento experimental. Então, realizaram-se ensaios fluidodinâmicos com a MCC (celulose microcristalina), variando a amplitude e a frequência de vibração em três e duas condições, respectivamente, resultando em uma ampla faixa de adimensionais de vibração ( $\Gamma$ ). O número adimensional de vibração foi calculado pela equação 2.1. Os conjuntos de valores de amplitude e de frequência de vibração estão apresentados na Tabela 3.2, bem como os adimensionais de vibração.

**Tabela 3.2 Parâmetros vibracionais.**

Adimensional de vibração, $\Gamma$	Amplitude, A (m)	Frequência, f (Hz)
0	0	0
0,36	0,01	3
0,72	0,02	3
1,09	0,03	3
1,45	0,01	6
2,90	0,02	6
4,35	0,03	6

A velocidade de mínima fluidização com vibração foi determinada utilizando-se três métodos: velocidade de mínima mistura (Gupta e Mujumdar, 1980b),  $U_{mm}$ , obtida por observação visual; método tradicional utilizado em leito fluidizado convencional da interseção de duas retas, leito fixo e fluidizado (Kunii e Levenspiel, 1991); e velocidade de mínima fluidização completa (Silva et al., 2007), a qual é obtida quando se atinge perda de carga constante no leito. Essas determinações foram feitas utilizando-se curvas experimentais da queda de pressão do leito em função da velocidade do ar para velocidades decrescentes e carga no leito de 300g.

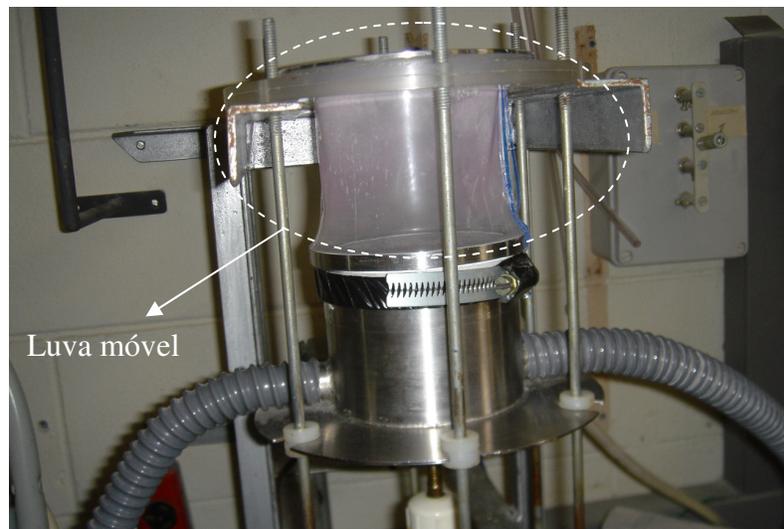
A etapa seguinte consistiu em se definir a velocidade de operação com base nas velocidades de mínima fluidização obtidas nas diferentes condições de vibração.

O comportamento fluidodinâmico da celulose microcristalina com a injeção de ar de atomização no leito durante a vibração também foi observado. Pelo bico atomizador acoplado ao sistema experimental, ar de atomização foi injetado a uma pressão de 5 Psig e o comportamento das partículas foi observado a olho nu. A faixa de pressão de atomização adequada para o processo de granulação foi definida baseando-se nesses ensaios e em resultados encontrados na literatura para leitos fluidizados como em Cunha (2004), que utilizou as faixas de 10, 15 e 20 Psig para o recobrimento de celulose microcristalina.

### **3.3.2 Ensaios Preliminares**

Os ensaios preliminares foram realizados com o objetivo de fixar os níveis das variáveis operacionais de entrada para a condução do planejamento.

Os parâmetros de vibração escolhidos para os testes preliminares foram: amplitude igual a 0,02m e frequência igual a 6 Hz. Essa decisão foi tomada a partir das curvas obtidas nos ensaios fluidodinâmicos. Essa condição apresentou a menor velocidade inicial de movimento das partículas e uma das maiores perdas de massa por elutrição. A condição de amplitude 0,03m e de frequência 6 Hz foi descartada do planejamento porque a amplitude elevada desgastava muito a “luva” móvel (Figura 3.5) do equipamento, não permitindo um trabalho sem interrupções para manutenção durante o experimento. Durante os ensaios foi realizado um acompanhamento do processo através de observações visuais na dinâmica das partículas do leito para verificar a sua tendência à saturação.

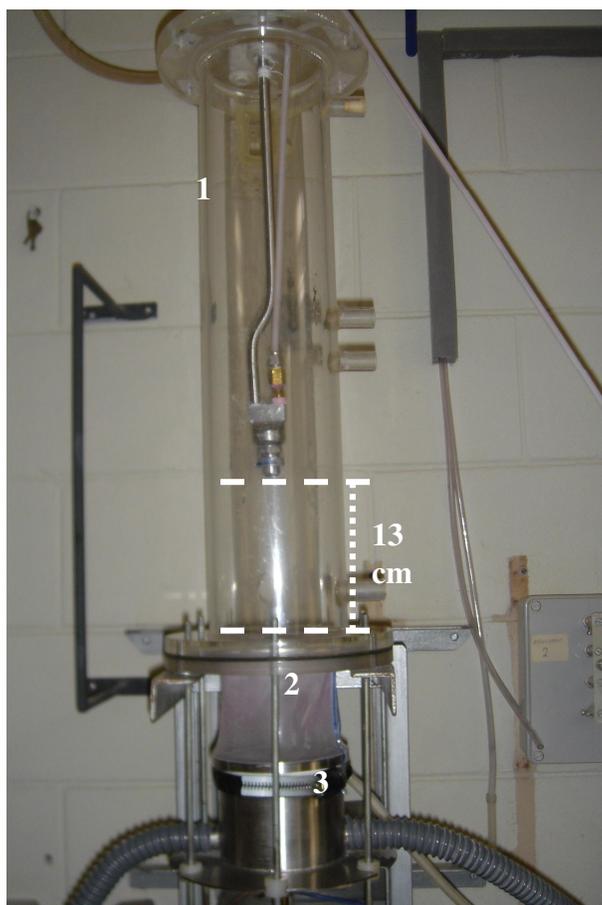


**Figura 3.5 Luva móvel do leito vibrofluidizado.**

Assim, as condições estabelecidas para iniciar os ensaios preliminares foram: maior amplitude de vibração, 0,02m, maior frequência de vibração, 6 Hz, menor temperatura do ar de entrada, 60°C, menor pressão de atomização, 5 Psig, e maior vazão de solução, 10ml/min; condições essas consideradas bastante adversas.

Na realização dos ensaios preliminares houve também um questionamento a respeito da posição do bico atomizador. O sistema de atomização não poderia ficar muito acima do leito de partículas porque as gotas poderiam atingir as paredes do leito em acrílico e acabar não granulando o material, além da possibilidade de secar antes de atingir as partículas. Também não poderia ficar muito próximo às partículas pela possibilidade da

celulose microcristalina entrar no sistema e entupir o bico acarretando na interrupção do experimento, e, portanto, inviabilizando a granulação. Como para cada par de parâmetros vibracionais a superfície do leito de partículas fica a uma altura diferente, a definição da posição do bico atomizador apresentou dificuldades. Com os ensaios preliminares de granulação, foi possível estabelecer a altura do bico atomizador. Por fim, ficou determinado fixar o dispositivo a uma altura de 13 cm acima da base do leito em acrílico diretamente ligado a “luva” que comporta a celulose microcristalina, conforme a Figura 3.6.



**1 – leito em acrílico, 2 – luva móvel, 3 – câmara plena**

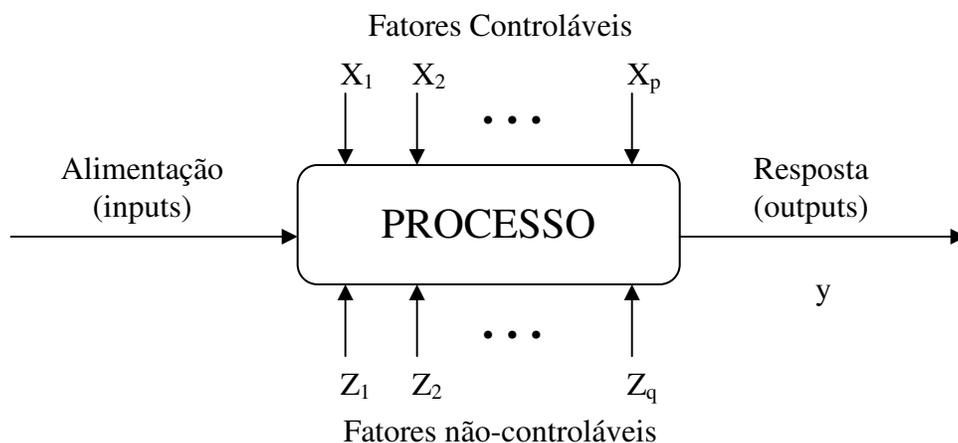
**Figura 3.6 Altura do bico atomizador.**

A celulose microcristalina granulada sob as condições estipuladas para os ensaios preliminares foi submetida à análise granulométrica. Para esses ensaios, o crescimento das partículas foi analisado em relação ao diâmetro médio de Sauter.

### 3.3.3 Planejamento Fatorial de Experimentos

É comum, especialmente em processos químicos, aparecerem problemas em que há necessidade de estudar várias propriedades ao mesmo tempo e estas, por sua vez, são afetadas por um grande número de fatores experimentais (Barros Neto et al., 2003). Portanto, para não haver abordagens que tragam resultados não significativos, ou desperdício de tempo ou de material, deve-se realizar um planejamento inicial chamado de planejamento de experimentos ou do inglês *Design of Experiments*, DOE.

Planejamento de experimentos é uma série de processos estruturados, ou estratégias, para a resolução de problemas e produção de conhecimento, em que são feitas mudanças propositalmente nos fatores que controlam o processo ou que determinam as características de um produto. Dados são apropriadamente coletados e analisados por métodos estatísticos. Os resultados são conclusões válidas e objetivas que levam ao alcance de uma meta de melhoria para o produto ou processo estudado (Colacioppo e Formigari, 1997). Na Figura 3.7 está a representação do funcionamento de um planejamento de experimentos.



**Figura 3.7** Esquema de operação de um planejamento de experimentos.

(Fonte: COLACIOPPO e FORMIGARI, 1997).

Para realizar um planejamento fatorial completo, um investigador escolhe um número fixo de níveis para cada uma de uma série de variáveis (fatores) e, em seguida, executa as experiências com todas as combinações possíveis. Se há  $l_1$  níveis para a primeira variável,  $l_2$  para a segunda, ..., e  $l_n$  para n-ésima variável, o arranjo completo de  $l_1 \times l_2 \dots \times l_n$  corridas experimentais é descrito em  $l_1 \times l_2 \dots \times l_n$  planejamento fatorial. Por exemplo, um  $2 \times 3 \times 5$  planejamento fatorial requer  $2 \times 3 \times 5 = 30$  corridas, e um  $2 \times 2 \times 2 = 2^3$  planejamento fatorial, 8 corridas. Os planejamentos que ocorrem em apenas dois níveis são importantes por inúmeras razões, entre elas: requerem relativamente poucas corridas por fatores estudados; e embora eles sejam incapazes de explorar plenamente uma vasta região do fator espaço, podem indicar tendências importantes e assim indicar uma direção promissora para novos experimentos. E, também, formam a base para o planejamento fatorial fracionário de dois níveis. Estes planejamentos fracionários são muitas vezes de grande valor em um estágio inicial de uma investigação, pois em estágio de um experimento preliminar visa analisar um grande número de fatores mesmo que superficialmente, ao invés de um pequeno número (que pode ou não incluir os mais importantes) cuidadosamente (BOX et al., 1978).

O número de corridas necessárias por um planejamento fatorial completo  $2^n$  aumenta geometricamente com o aumento de  $n$ . No entanto, quando  $n$  não é pequeno ( $n > 4$ ) a informação desejada muitas vezes pode ser obtida pela interpretação de apenas uma fração do planejamento fatorial completo (BOX et al., 1978).

Diante disso, como foram propostas as análises de 5 variáveis para a execução desse trabalho e, portanto, um planejamento experimental completo seria longo, trabalhoso e custoso, pois envolveria no mínimo 32 corridas, decidiu-se trabalhar com o planejamento experimental fracionário ( $2^{5-1}$ ) com quatro repetições no ponto central. Para o planejamento, trabalhou-se com dois níveis, -1 e +1, que são os níveis mínimo e máximo, respectivamente, e cinco variáveis de entrada que foram: a amplitude de vibração (A), a frequência de vibração (f), a temperatura do ar de entrada (T), a vazão de solução de maltodextrina (Q) e a pressão de atomização (P). Para o ponto central, os valores dessas variáveis foram: 0,015m, 4,5 Hz, 70°C, 7ml/min e 10 Psig, respectivamente. Os níveis das variáveis foram definidos nos ensaios preliminares e baseados na literatura (Cunha, 2004; Silva et al., 2004), e revelaram-se possíveis de se trabalhar para a granulação da celulose microcristalina em leite vibrofluidizado. As variáveis de resposta analisadas foram:

crescimento da partícula ( $C$ ), ângulo de repouso ( $\alpha_r$ ) e índice de aglomerados ( $I_{Ag}$ ). A Tabela 3.3 apresenta as variáveis de entrada e seus respectivos níveis e os parâmetros que foram mantidos fixos no processo (velocidade do ar e altura do bico atomizador).

**Tabela 3.3 Valores das variáveis de entrada para o planejamento  $2^{5-1}$ .**

<i>Nível</i>	<i>-1</i>	<i>0</i>	<i>+1</i>
T (°C)	60	70	80
f (Hz)	3	4,5	6
A (m)	0,01	0,015	0,02
Q (ml/min)	4	7	10
P (Psig)	5	10	15
U (m/s)		0,3	
h (m)		0,13	

### 3.3.4 Caracterização das partículas

O problema de caracterizar um sólido e de prever as suas características encontra-se em toda a engenharia. Os engenheiros civis tratam dele nos agregados de concreto, nos solos, nos sedimentos dos rios. Os engenheiros de minas e os metalúrgicos encaram este problema em todas as circunstâncias de manuseio de um minério. Os engenheiros químicos encontram os sólidos particulados ao efetuarem muitas operações unitárias – por exemplo, na moagem, na secagem, na filtração, na cristalização, na reação entre sólidos e fluidos, na coleta de poeiras, etc., que constituem parte de qualquer processo de obtenção de produtos sólidos, como o de fabricação de catalisadores de muitas reações químicas industrialmente importantes. Independente do tipo de produto, certas características são desejadas em produtos granulados. Para garantir a incorporação desejada, algumas propriedades físicas devem ser determinadas e controladas (FOUST et al., 1982; KADAM, 1991).

Para as partículas de celulose microcristalina, foram analisadas a distribuição de tamanho (análise granulométrica) e a fluidez (ângulo de repouso e índice de Hausner), cujas propriedades foram obtidas antes e após o processo de granulação no leito vibrofluidizado para efeito de comparação.

A seguir, as propriedades físicas que foram utilizadas antes e depois do processo de granulação de celulose microcristalina em leito vibrofluidizado.

### 3.3.4.1 Análise Granulométrica

O modo de exprimir as dimensões das partículas depende dos dispositivos de medida adotados. O dispositivo mais comum é o que utiliza peneiras padronizadas e agitador. O agitador de peneiras que foi utilizado para auxiliar na determinação do crescimento das partículas foi o modelo Produtest, cujo fabricante é Produtest Indústria Brasileira e opera em 50/60 ciclos.

O diâmetro médio de Sauter é calculado pela equação 3.2, em que é o inverso do somatório da razão entre a fração mássica das partículas que ficaram retidas em cada peneira,  $X_i$ , pelo diâmetro médio das partículas ( $d_p$ ) calculado com o auxílio do diâmetro da malha das peneiras da série Tyler.

$$d^s = \frac{1}{\sum_i^n \frac{X_i}{d_{pi}}} \quad 3.2$$

Benali et al. (2008) também realizaram granulação de celulose microcristalina, porém utilizando um agitador de alta mistura. Os autores analisaram o diâmetro médio do material pela equação 3.3. Para efeito de comparação entre os diâmetros, essa equação também foi utilizada para o cálculo do diâmetro médio no presente trabalho.

$$d_p^{3.3} = \frac{\sum_i X_i \cdot d_{pi}}{\sum_i X_i} \quad 3.3$$

Onde  $X_i$  é a fração mássica da partícula no intervalo de tamanho  $i$ ,  $d_{pi}$  é o diâmetro médio no intervalo de tamanho  $i$  ( $\mu\text{m}$ ).

O crescimento das partículas de celulose microcristalina em leito vibrofluidizado foi calculado pela expressão dada na equação 3.4 e 3.5.

$$C (\%) = \frac{d_a^S - d_a^S}{d_a^S} \cdot 100 \quad 3.4$$

Onde  $d_a^S$  é o diâmetro médio de Sauter inicial (antes da granulação) e  $d_d^S$  é o diâmetro médio final no tempo t (depois da granulação).

$$C^{3.3} (\%) = \frac{d_d^{3.3} - d_a^{3.3}}{d_a^{3.3}} \cdot 100 \quad 3.5$$

Onde  $d_a^{3.3}$  é o diâmetro médio, calculado pela equação 3.3, inicial (antes da granulação) e  $d_d^{3.3}$  é o diâmetro médio final no tempo t (depois da granulação).

O índice de aglomeração também foi calculado em cada ensaio experimental e foi obtido da seguinte forma: após a granulação no leito vibrofluidizado, o material foi colocado em uma peneira de abertura 1,41mm (1410µm) e a massa retida nessa peneira foi considerada como aglomerado (torrões), sendo o seu índice de aglomeração calculado pela equação 3.6.

$$I_{Agl} (\%) = \frac{M_{Aglomerados}}{M_t} \cdot 100 \quad 3.6$$

Onde  $M_{Aglomerados}$  é a massa de aglomerados retida e  $M_t$  é a massa total de partículas carregadas dentro do leito no início do experimento.

### 3.3.4.2 Ângulo de Repouso

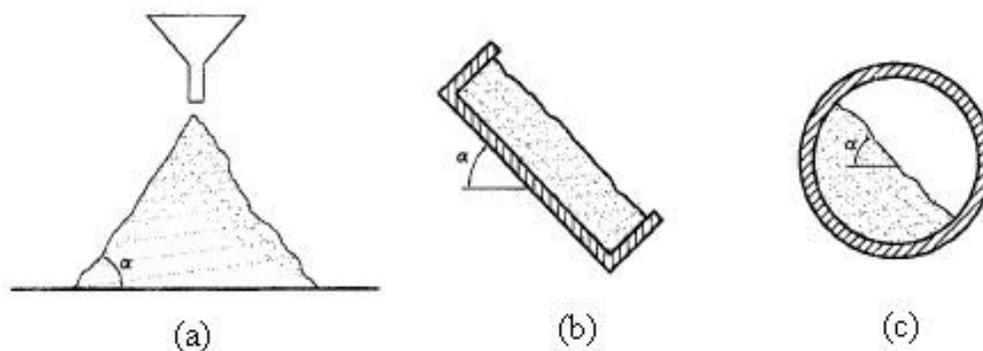
A escoabilidade das partículas e o seu comportamento em fluxo a baixas pressões, temperatura e umidade são importantes no manuseio e operações de processo, tais como o armazenamento em alimentadores e silos, transporte, formulação e mistura, compressão e embalagem. Esse comportamento dos materiais granulares é de grande interesse

tecnológico e sua investigação tem uma história de mais de 200 anos (KNOWLTON et al., 1994; JAEGER et al., 1996; TEUNOU et al., 1999).

Uma medida bastante utilizada para medir a escoabilidade de empacotamento livre das partículas é o ângulo de repouso estático (Figura 3.8a), que é o ângulo com a horizontal feito por uma pilha de partículas de uma altura fixa, que é criada pelo seu despejo suave. Existem diferentes formas de se determinar este parâmetro e, alguns métodos são padronizados: ISO 3923/1 (1979), ISO 3923/2 (1981) e ISO 3923/1 (2008) (JONG et al., 1999).

O ângulo de repouso dinâmico, às vezes chamado de ângulo de inclinação, informa sobre o comportamento da partícula em (lento) movimento (Figura 3.8b, c). Essa medida está relacionada com o movimento da superfície tal como uma mesa inclinada ou um tambor rotativo (JONG et al., 1999; WOUTERS e GELDART, 1996).

Quando materiais granulares são colocados em um tambor rotativo, camadas são observadas ao longo da superfície da massa granular. Nos processos industriais, tais dispositivos são principalmente utilizados para misturar diferentes tipos de partículas. (DURY et al., 1998).



**Figura 3.8 Ângulo de repouso. (a) estático; (b, c) dinâmico.**

(Fonte: WOUTERS e GELDART, 1996).

O método do tambor rotativo foi utilizado para a determinação do ângulo de repouso neste trabalho. As partículas foram adicionadas ao tambor e homogeneizadas dentro dele. E, então, o ângulo obtido pelo deslizamento da primeira camada de partículas após a rotação do tambor foi lido e após dez medidas a média foi calculada. A escoabilidade do material foi caracterizada segundo a Tabela 3.4, a qual apresenta um sistema de classificação relacionando a faixa de valores do ângulo de repouso com o tipo de escoamento do material.

**Tabela 3.4 Classificação em relação ao ângulo de repouso.**

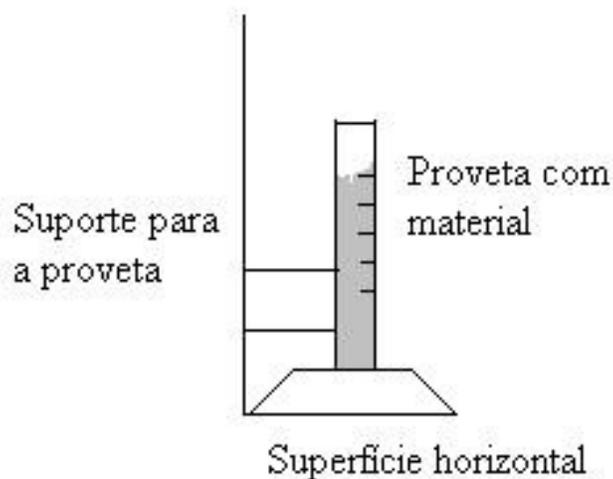
<i>Escoabilidade</i>	<i>Ângulo de repouso*</i>
Sem fluidez	> 60°
Coesivo	> 60°
Fluidez regular	45° a 60°
Boa fluidez ( <i>free-flowing</i> )	30 a 45°
Excelente fluidez	10° a 30°
Aerado	< 10°

\*medidas baseadas no ângulo de repouso estático.

(Fonte: JONG et al., 1999).

### 3.3.4.3 Razão Hausner

A metodologia aplicada neste trabalho para a determinação das densidades para a determinação da razão Hausner foi proposta por Hahne (2001), onde a nomenclatura utilizada foi de empacotamento livre e compactação máxima para as densidades aparente aerada e aparente compactada, respectivamente. O procedimento consiste em pesar 20g da amostra e transferí-la de forma lenta e gradual para o interior de uma proveta de polipropileno de 250 ml, sendo o volume ocupado por esta massa registrado (densidade aparente aerada). Em seguida, após vedar a proveta com filme plástico, para que não haja perda de material, ela é suspensa a uma altura de 20 cm sobre uma superfície horizontal, e posteriormente solta por 40 vezes consecutivas. Em seguida, o volume é novamente registrado (densidade aparente compactada) e o cálculo para as densidades é efetuado. Um esquema de como é realizado os ensaios está apresentado na Figura 3.9.



**Figura 3.9 Representação da metodologia utilizada.**

Essa metodologia foi repetida para cada ensaio experimental por 10 vezes e os volumes obtidos antes e depois das batidas foram registrados como sendo a média entre o maior e menor volume obtido na acomodação do material na proveta.

Com essas densidades, é possível se calcular a razão Hausner. A Tabela 3.5 apresenta as classificações sobre a escoabilidade do material em relação ao valor da razão Hausner encontrada.

**Tabela 3.5 Fluidez em relação à razão Hausner.**

<i>Características do escoamento</i>	<i>Razão Hausner</i>	<i>Grupo na classificação de Geldart</i>
Sem fluidez	> 1,4	C
Coesivo	>1,4	
Fluidez regular	1.25 a 1,4	A→C
Boa fluidez ( <i>free-flowing</i> )	1,0 a 1,25	
Excelente fluidez	1,0 a 1,25	A/ B/ D
Aerado	1,0 a 1,25	

(Fonte: GELDART, 1984; JONG et al.,1999).

Altas forças coesivas entre partículas impedem que estas rolem ou deslizem umas sobre as outras, quando fluidizadas. O não deslizamento destas partículas induz uma estrutura de empacotamento do leito mais aberta, com redução de densidade aparente do leito de partículas em seu empacotamento livre. Esta estrutura mais aberta pode ser rompida facilmente pela vibração ou impacto mecânico, resultando em uma porosidade mais baixa nas condições de empacotamento máximo. Isto assegura altos valores de HR para materiais coesivos e, portanto, uma quantificação, ainda que indireta, do grau de coesão entre partículas (HAHNE e PASSOS, 2001).

## CAPÍTULO 4

### RESULTADOS E DISCUSSÃO

Este capítulo apresenta os resultados e discussões relativas à parte experimental do trabalho que são:

- análise da fluidodinâmica do leito e determinação da velocidade de mínima fluidização no leito vibrofluidizado (LVF) baseado nos ensaios fluidodinâmicos,
- determinação da velocidade de operação para os ensaios de granulação,
- distribuição granulométrica da celulose microcristalina antes e depois dos ensaios preliminares de granulação,
- planejamento experimental fracionário  $2^{5-1}$  com análise estatística para as variáveis de resposta: crescimento da partícula (C), ângulo de repouso ( $\alpha_r$ ) e índice de aglomeração das partículas ( $I_{Agl}$ ),
- caracterização antes e depois da granulação de celulose microcristalina: análise granulométrica, diâmetro médio de Sauter e escoabilidade (razão de Hausner).

#### 4.1 Ensaios Fluidodinâmicos

##### 4.1.1 Análise das curvas fluidodinâmicas

Conforme explicitado no capítulo 3, a velocidade de mínima fluidização em leitos vibrofluidizados foi determinada como: velocidade de mínima mistura (Gupta e Mujumdar, 1980b), mínima fluidização pelo método tradicional em leito fluidizado (Kunii e Levenspiel, 1991), e mínima fluidização completa (Silva et al., 2007).

A velocidade de operação foi estimada baseando-se nos resultados encontrados nos ensaios fluidodinâmicos para cada condição de vibração e depois a testando no processo de granulação. Essa velocidade operacional deve manter as partículas em regime

de fluidização desde o início da granulação e, permanecendo dessa forma até o final do processo.

A determinação da velocidade de mínima mistura foi feita por observação visual no momento em que as primeiras partículas começaram a se misturar, ou seja, experimentalmente quando cessou a movimentação do leito para vazões decrescentes no teste fluidodinâmico.

Teve-se dificuldade para a determinação da velocidade de mínima fluidização pelos métodos da interseção das retas e de fluidização completa. As curvas fluidodinâmicas em leitos vibrofluidizados nem sempre possuem transição bem definida do leito fixo para o fluidizado como observado nos leitos fluidizados convencionais.

Em alguns ensaios realizados neste trabalho, a queda de pressão nas curvas fluidodinâmicas experimentais não se mantinha constante, o que levou a dificuldade em traçar as retas para aplicação dos dois métodos citados no parágrafo anterior. Entretanto, se for adotado o critério de utilizar-se o ponto onde a reta de leito fixo deixa de ajustar os pontos experimentais da curva  $\Delta P \times U$  (queda de pressão  $\times$  Velocidade do ar), identificando claramente uma mudança de regime dinâmico, pode-se obter a velocidade de mínima fluidização ( $U_{mf}$ ). Todas as velocidades determinadas pelos gráficos  $\Delta P \times U$  gerados para velocidades decrescentes do gás, quando possível, estão apresentadas na Tabela 4.1.

**Tabela 4.1 Velocidades de mínima fluidização sem e com vibração.**

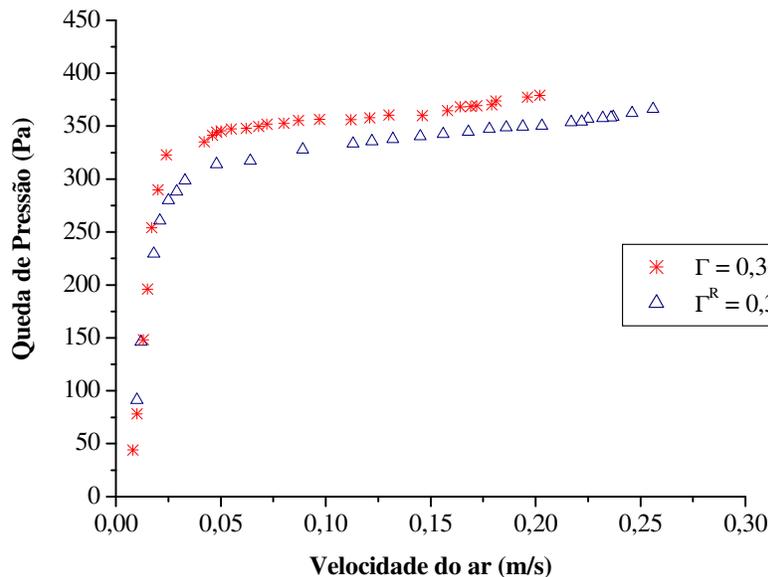
Parâmetros vibracionais			Carga de partículas, M = 0,3kg		
$\Gamma$	A (m)	f (Hz)	$U_{mm}$ (m/s)	$U_{mf}$ (m/s)	$U_{mvfc}$ (m/s)
0	0	0	0,035	0,038	-
0,36	0,01	3	0,036	0,025	0,070
0,36 <sup>R</sup>	0,01	3	0,029	0,025	0,080
0,72	0,02	3	0,038	0,020	0,080
1,09	0,03	3	0,044	0,020	0,076
1,45	0,01	6	0,039	0,025	-
1,45 <sup>R</sup>	0,01	6	0,027	0,020	0,082
2,90	0,02	6	0,021	0,025	-
4,35	0,03	6	-	-	-

$U_{mm}$ : velocidade de mínima mistura;  $U_{mf}$ : obtida pelo método da interseção das retas;  $U_{mvfc}$ : velocidade de mínima fluidização completa para leitos vibrofluidizados;  $\Gamma^R$  é a repetição.

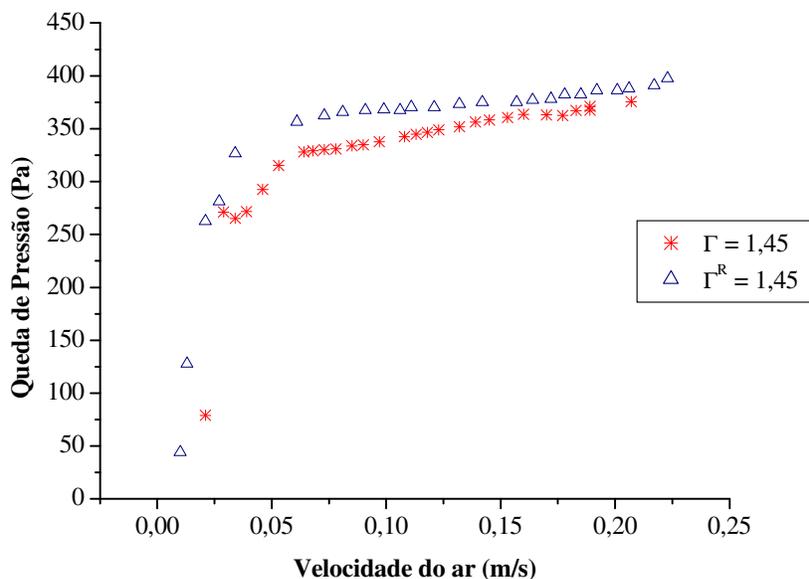
Observa-se na Tabela 4.1 que praticamente não houve modificação significativa nos valores de  $U_{mf}$ . Esse comportamento concorda com a teoria da fluidização convencional, em que a velocidade de mínima fluidização não deve variar para um único tipo de partícula.

Entretanto, o comportamento das curvas foi bastante distinto do gráfico para fluidização convencional, como será discutido a seguir. Observa-se também que os valores de  $U_{mf}$  em todos os ensaios com vibração foram menores que o valor obtido para  $\Gamma = 0$ . Mostrando assim, que no caso do leito de celulose microcristalina (MCC), a vibração causou diminuição na velocidade de mínima fluidização,  $U_{mf}$  (GUPTA e MUJUMDAR, 1980a; DELLA TONIA e FREIRE, 1989; JINESCU et al., 2000; SILVA MORIS, 2002).

Apenas duas condições foram repetidas:  $\Gamma = 0,36$  e  $\Gamma = 1,45$ . Essas condições foram escolhidas aleatoriamente (uma com  $\Gamma < 1$  e outra com  $\Gamma > 1$ ) e antes de analisar a curva fluidodinâmica. A Figura 4.1 mostra os gráficos obtidos para essas condições e suas réplicas.



(a)



(b)

**Figura 4.1** Curvas fluidodinâmicas: (a)  $\Gamma = 0,36$  e (b)  $\Gamma = 1,45$ .

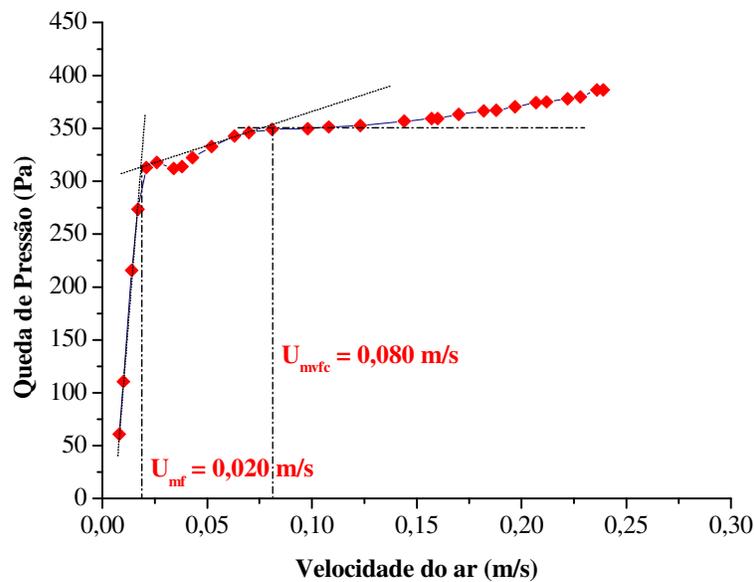
As curvas das condições  $\Gamma = 0,36$  e  $\Gamma = 1,45$  apresentaram boa reprodutibilidade, conforme visto na Figura 4.1. Para  $\Gamma = 0,36$ , foi observado semelhança com a curva fluidodinâmica encontrada por Silva Moris (2002) para o ácido adípico nas condições de amplitude 0,01m e frequência 3,33Hz ( $\Gamma = 0,5$ ).

As curvas fluidodinâmicas obtidas nesse trabalho assemelham-se às curvas mostradas na Figura 2.6. Na condição  $\Gamma = 0,36$  a curva apresentou pontos de leito fixo bem definidos, o que não ocorreu para  $\Gamma = 1,45$  e no momento de transição para o estado fluidizado, obteve-se em ambos os casos, uma curva suave sem ponto máximo de queda de pressão, comportamento característico dos leitos fluidizados convencionais. A suavização da curva no início da fluidização, sem identificação de uma queda de pressão máxima também já tem sido observada em leitos vibrofluidizados (DELLA TONIA e FREIRE, 1989; DALEFFE, 2002; SILVA MORIS, 2002).

Mesmo com suavização da curva, ressalta-se a mudança de comportamento do gráfico na região de leito fixo e na que ajusta os pontos na região de fluidização, podendo-se identificar o ponto que deve corresponder ao início da movimentação do leito, ou seja,

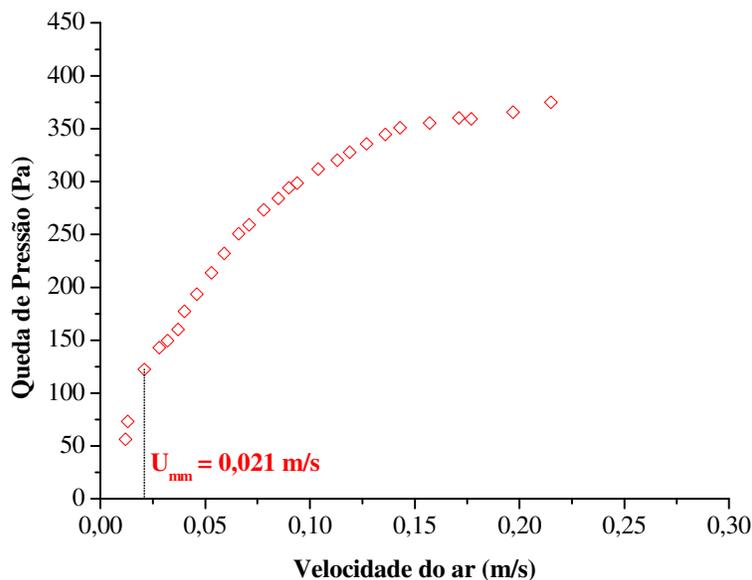
$U_{mf}$ . Para o ensaio  $\Gamma = 0,36$  (e sua réplica),  $U_{mf}$  foi de 0,025 m/s e  $U_{mm} = 0,036$  m/s e, para a réplica,  $U_{mm} = 0,029$  m/s. Para  $\Gamma = 1,45$  (e sua réplica),  $U_{mf}$  foi de 0,025 m/s e  $U_{mm} = 0,039$  m/s e, para a réplica,  $U_{mf} = 0,020$  m/s e  $U_{mm} = 0,027$  m/s.

Com o aumento da amplitude,  $A = 0,02m$ , mantendo a frequência constante em 3 Hz, a forma gráfica da fluidodinâmica sofreu alteração. Nesse caso (Figura 4.2), foi observada a presença de dois patamares (ou platôs), onde o primeiro (aproximadamente em 310 Pa) caracteriza o movimento do material relacionado aos efeitos da vibração e o segundo (em 350 Pa) é característico de fluidização, em que o ar torna-se suficiente para suspender as partículas (equilíbrio das forças). Essa forma gráfica é semelhante à fluidização do mármore (Figura 2.6c).



**Figura 4.2** Curva fluidodinâmica para  $\Gamma = 0,72$ .

A condição de  $\Gamma = 2,90$  (amplitude 0,02m e frequência 6 Hz) apresentou curva fluidodinâmica sem nenhuma presença de patamar definido e com transição entre as condições de leito fixo para fluidizado determinada por uma ampla faixa de velocidade do ar. Não foi possível identificar a velocidade de mínima fluidização completa neste ensaio. O gráfico está apresentado na Figura 4.3.



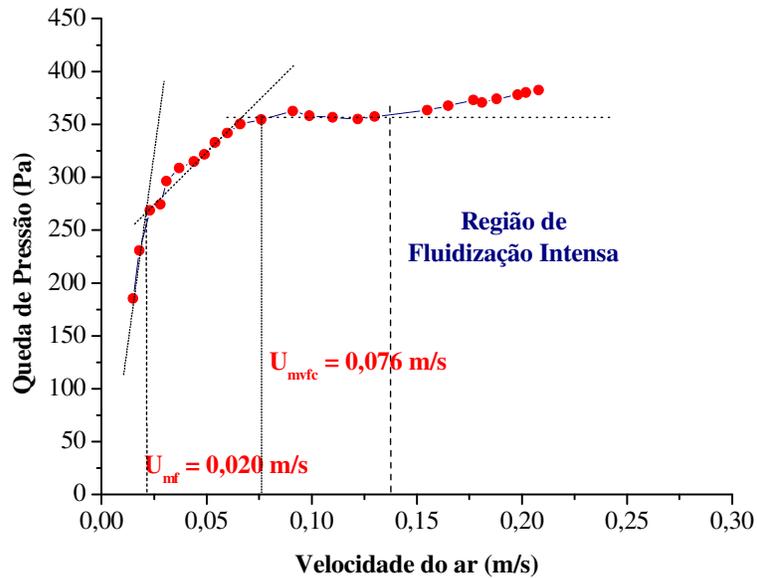
**Figura 4.3 Curva fluidodinâmica para  $\Gamma = 2,90$ .**

Esse tipo de comportamento apresentado na Figura 4.3, também foi observado por Della Tonia e Freire (1989). Os autores utilizaram como material para o estudo fluidodinâmico o painço, utilizando um leito com vibração na placa distribuidora de ar, com amplitude e frequência de vibração de 0,006 m e 8,35 Hz (501 rpm), respectivamente. Observaram que a curva obtida apresentava uma região de transição entre o estado estático (leito fixo) e o fluidizado para uma ampla faixa de velocidade do fluido. Reportaram, também, que a curva pode ser tipicamente quebrada em três distintos segmentos de reta, conforme já evidenciado por Strumillo e Pakowski (1980).

A curva fluidodinâmica para a areia obtida por Strumillo e Pakowski (1980) (Figura 2.6d), também apresentou semelhança com a Figura 4.3. Portanto, esse tipo de comportamento também foi observado para  $\Gamma < 1$  (0,80).

As curvas fluidodinâmicas da celulose microcristalina também apresentaram uma região que foi denominada de região de fluidização intensa caracterizando um movimento aleatório e mistura vigorosa. A velocidade inicial dessa região não foi a mesma para cada condição de vibração e foi determinada quando ocorreu mudança na inclinação dos pontos

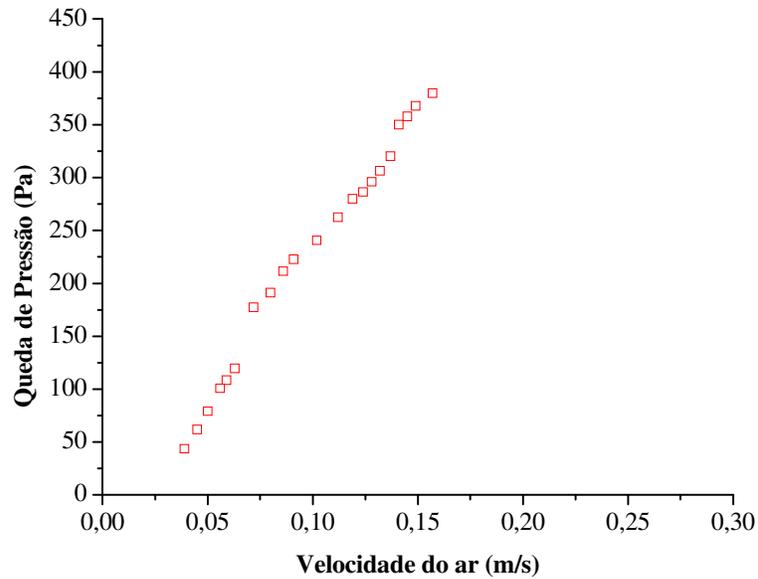
da região de fluidização completa. Essa condição foi confirmada por observação visual. Como exemplo, apresenta-se a Figura 4.4 da condição  $\Gamma = 1,09$  (amplitude 0,03m e 3 Hz).



**Figura 4.4 Região de fluidização intensa para  $\Gamma = 1,09$ .**

A condição  $\Gamma = 4,35$  (Figura 4.5) foi a mais instável, e neste caso, a condição vibracional foi capaz de estabelecer movimento das partículas mesmo para velocidades muito baixas, não se identificando o estado de leito fixo. O processo apresentou, ainda, contínuo aumento na queda de pressão, juntamente com aumento da velocidade do ar.

Assim, a condição de  $\Gamma = 4,35$  não foi utilizada como parâmetro para os ensaios preliminares de granulação por estabelecer um regime de difícil controle.



**Figura 4.5** Curva fluidodinâmica para  $\Gamma = 4,35$ .

A forma como foram obtidas as velocidades apresentadas na Tabela 4.1 são ilustradas a seguir: velocidade de mínima fluidização (Fig. 4.6) e velocidade de fluidização completa (Fig. 4.7). Como já foi explicado, a velocidade de mínima mistura foi obtida por observação visual, e a  $U_{mm}$  foi inserida nos gráficos (Figuras 4.3 e 4.8) apenas de forma ilustrativa, para informação do ponto onde foi observado o início da mistura ou movimento das partículas no leito.

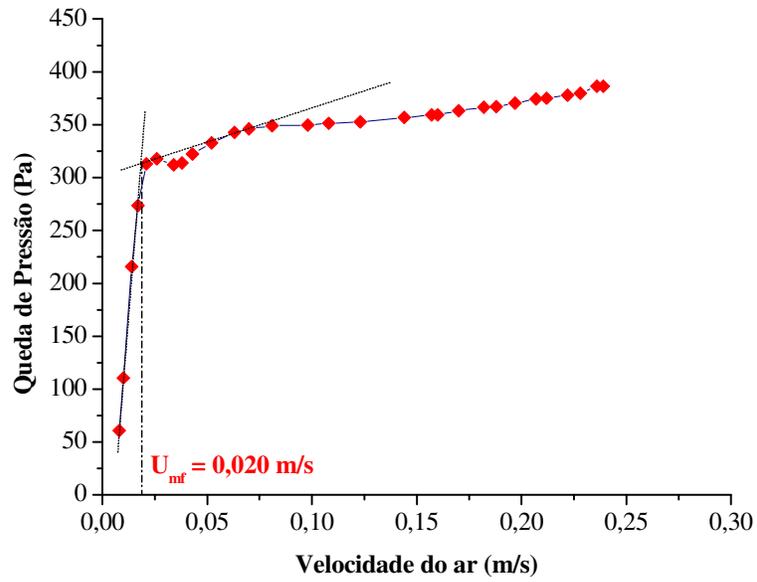


Figura 4.6 Velocidade de mínima fluidização para  $\Gamma = 0,72$ .

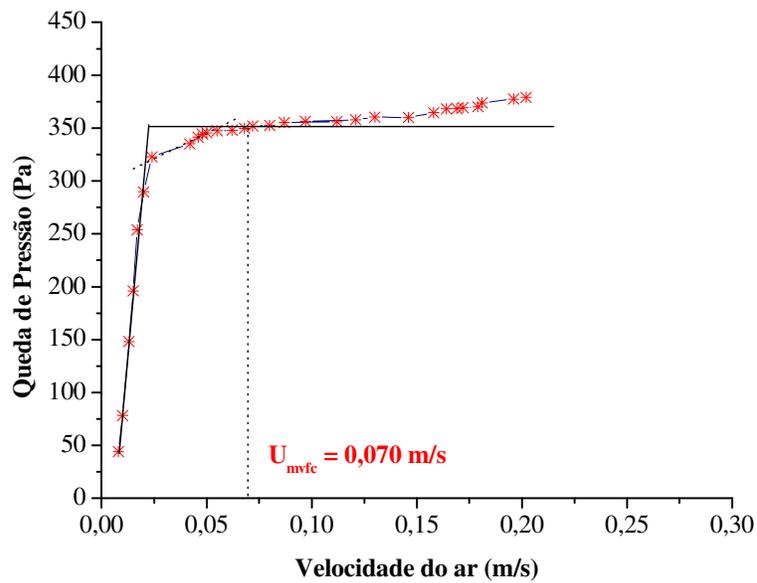
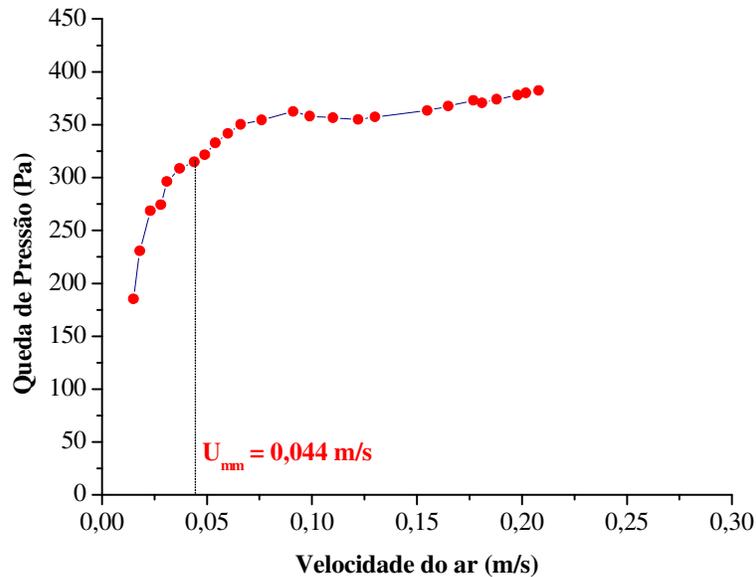


Figura 4.7 Velocidade de mínima fluidização completa para  $\Gamma = 0,36$ .



**Figura 4.8 Velocidade de mínima mistura para  $\Gamma = 1,09$ .**

As curvas fluidodinâmicas da celulose microcristalina obtidas, confirmam a dificuldade de determinação da velocidade de mínima fluidização, discutida na literatura para leitos vibrofluidizados (Bratu e Jinescu, 1971; Mushtayev et al., 1973; Gupta e Mujumdar, 1980b; Érdez, 1990; Jinescu et al., 2000; Silva et al., 2007). Os gráficos comprovaram que há uma faixa de velocidade entre os regimes de leito fixo e leito fluidizado e que, portanto, o método das retas tangentes não se torna seguro para obtenção de  $U_{mf}$  em leitos vibrofluidizados.

Em praticamente todos os casos, a velocidade de mínima fluidização,  $U_{mf}$ , foi menor do que a velocidade de mínima mistura,  $U_{mm}$ , ou seja, o desvio da curva em relação ao leito fixo foi inferior à velocidade que indica os primeiros movimentos do material (observado visualmente), demonstrando que deve ter ocorrido expansão do leito antes do movimento. Salienta-se que, para o leito sem vibração, o valor de  $U_{mf}$  é praticamente o mesmo de  $U_{mm}$ , conforme era esperado.

Portanto, verificou-se neste trabalho que se pode determinar a velocidade mínima de fluidização com vibração de várias maneiras, entretanto, nenhuma é bem definida e fácil de ser identificada. Indica-se a análise da curva fluidodinâmica ( $\Delta P \times U$ ) em conjunto com

observações visuais do movimento das partículas para definir a velocidade de operação, acima da mínima fluidização.

Assim, neste trabalho, para se escolher a velocidade de operação os três métodos foram analisados: escolher trabalhar com a velocidade de mínima mistura, implica em realizar os ensaios em baixas velocidades e, portanto, não se teria garantia da manutenção da fluidização das partículas durante a granulação. A velocidade de mínima fluidização pelo método tradicional para leitos fluidizados convencionais, apresentou dificuldades de determinação e também forneceu baixos valores de velocidades do ar. Sendo assim, considerou-se a velocidade de referência mais adequada para estabelecer a velocidade de operação, a de mínima fluidização completa.

Esse foi o método escolhido como base para o estabelecimento da velocidade de operação, pois embora apresentasse valores superiores às outras duas, é a que apresentou regime dinâmico de fluidização estável com boa taxa de circulação das partículas.

#### **4.2 Ensaios Preliminares de Granulação**

Ensaios preliminares foram realizados em condições limites que pudessem levar o leito à saturação e ao colapso do regime, para definir os limites do planejamento. Para isso foram utilizadas temperatura e pressão de atomização baixas e vazão de solução alta (60°C, 5Psig, 10ml/min, respectivamente). Para os parâmetros vibracionais, amplitude e frequência foram fixadas em 0,02m e 6 Hz, respectivamente, conforme justificativa no item 3.3.2.

Os ensaios foram desenvolvidos da seguinte forma: inicialmente, com velocidade do ar igual a 0,15m/s, aproximadamente a velocidade de mínima fluidização intensa. Contudo, com essa velocidade houve dificuldade em manter as partículas fluidizando durante a aspersão de solução. Assim, uma outra condição foi estabelecida, escolhendo-se a velocidade de operação como sendo 2 vezes a velocidade de mínima fluidização intensa.

Entretanto, para se estabelecer uma única velocidade do ar para todos os ensaios do planejamento, testes preliminares foram realizados com as velocidades de 0,35 m/s e 0,30 m/s.

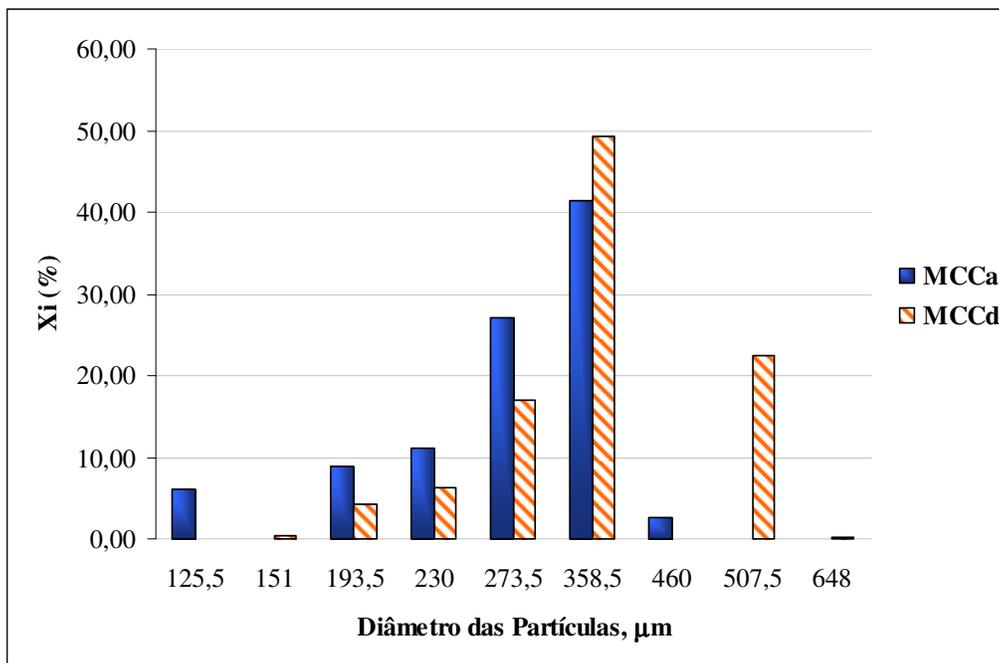
Nos testes realizados com velocidade de 0,35 m/s, a variável de resposta crescimento da partícula não apresentou resposta significativamente maior do que para os testes realizados com velocidade de 0,30m/s; assim, optou-se por conduzir os ensaios com velocidade de 0,30 m/s.

No total, foram realizados 10 ensaios preliminares onde as seguintes dificuldades foram encontradas para a sua execução: entupimento do bico atomizador durante o experimento e interrupção para manutenção do leito vibrofluidizado devido às condições de regime impostas ao equipamento. Os melhores resultados obtidos nos ensaios preliminares foram comparados e estão apresentados na Tabela 4.2 com suas distribuições granulométricas nas Figuras 4.9 e 4.10. Nos histogramas,  $MCC_a$  representa a celulose microcristalina antes de granular e  $MCC_d$  representa a celulose microcristalina depois de granular.

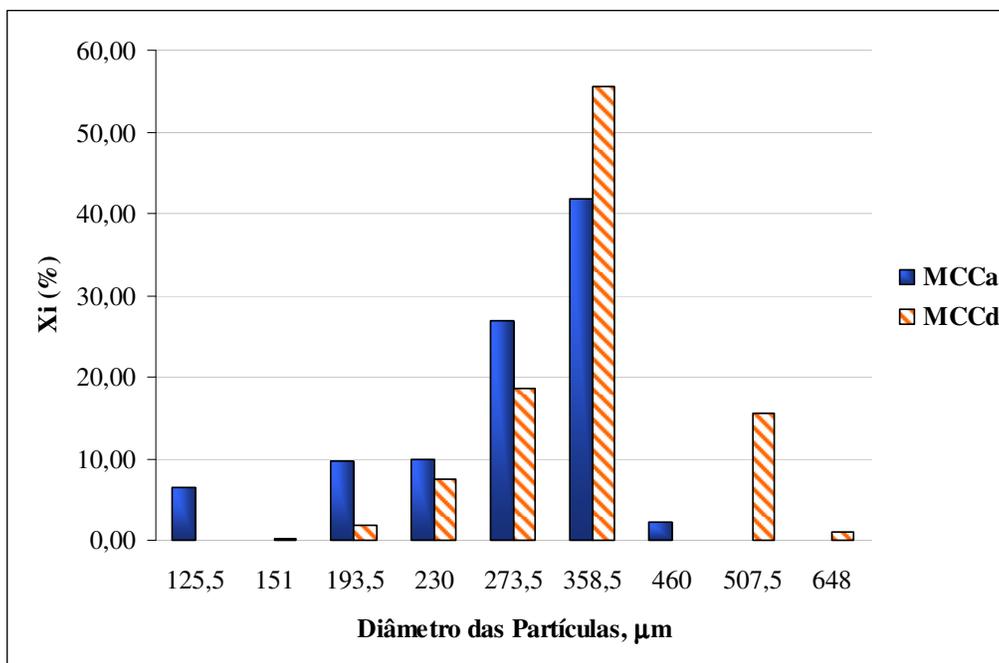
**Tabela 4.2 Comparação entre as repetições de dois ensaios preliminares.**

Ensaio Preliminar	I	II
Velocidade (m/s)	0,35	0,30
Tempo de aspersão (minutos)	15	15
Tempo experimental	44	28
Altura do bico atomizador (cm)	10	10
Crescimento da partícula	22,08%	22,02%

A diferença de tempo experimental entre os dois ensaios aconteceu devido à intermitência na aspersão da solução granulante. No ensaio I, houve três paradas: a primeira aos 8 minutos de aspersão, a segunda aos 12 minutos, onde o leito permaneceu sem introdução de solução por 1 minuto e a última parada aos 13 minutos de aspersão. O ensaio II também apresentou intermitência, mas apenas uma vez e já no final do experimento.



**Figura 4.9 Distribuição granulométrica para o ensaio preliminar I.**



**Figura 4.10 Distribuição granulométrica para o ensaio preliminar II.**

A altura do bico atomizador que para os primeiros ensaios preliminares era de 10 cm de altura acima da luva, sofreu alteração. Como durante os testes houve diversas vezes o entupimento do dispositivo, então a altura foi modificada para 13 cm, conforme mostrado na Figura 3.5. Com isso, a velocidade de operação e a altura do bico atomizador para as corridas experimentais do planejamento foram fixadas em 0,30m/s e 13 cm, respectivamente.

### 4.3 Planejamento Experimental

Foi realizado um planejamento experimental fracionário  $2^{5-1}$  de resolução V. Neste tipo de planejamento, as 4 primeiras colunas são formadas como um planejamento  $2^4$  e a última coluna é o resultado da multiplicação das 4 colunas anteriores ( $5 = 1234$ ).

Assim, os efeitos principais se confundem com as interações complementares de 4ª ordem e as interações de 2ª ordem se confundem com as de 3ª ordem. Contudo, a interação partir de 3ª ordem, não interfere no valor do efeito principal, pois tende a ser muito baixa.

O planejamento foi desenvolvido com o objetivo de caracterizar o processo (e não de otimizá-lo), ou seja, determinar a direção para as variáveis críticas e ajustar esses fatores. Dessa forma, foi desenvolvido um planejamento  $2^{5-1}$ , com 4 repetições no ponto central, totalizando 20 corridas experimentais.

O tempo total de aspersão de solução, para todas as corridas experimentais, foi fixado em 10 minutos e o limite de confiança estabelecido para a análise estatística foi de 95% ( $\alpha = 0,05$ ). Na Tabela 4.3 estão a matriz de experimento e as variáveis de resposta para o produto final.

**Tabela 4.3 Matriz de experimento e respostas: crescimento da partícula, ângulo de repouso e índice de aglomerados.**

Corrida	A	f	P	T	Q	C (%)	$\alpha_r$ (°)	$I_{Agl}$ (%)
1	-1	-1	-1	-1	+1	33,11	11,0	0,60
2	+1	-1	-1	-1	-1	10,25	9,7	3,23
3	-1	+1	-1	-1	-1	7,83	10,9	2,40
4	+1	+1	-1	-1	+1	17,73	10,2	1,83
5	-1	-1	+1	-1	-1	8,32	10,0	1,30
6	+1	-1	+1	-1	+1	13,04	9,5	1,63
7	-1	+1	+1	-1	+1	22,39	9,6	0,90
8	+1	+1	+1	-1	-1	11,85	8,4	0,97
9	-1	-1	-1	+1	-1	9,15	12,0	5,69
10	+1	-1	-1	+1	+1	16,47	9,4	1,70
11	-1	+1	-1	+1	+1	9,70	9,8	1,13
12	+1	+1	-1	+1	-1	11,21	8,4	2,10
13	-1	-1	+1	+1	+1	8,91	11,5	2,17
14	+1	-1	+1	+1	-1	3,18	11,2	1,17
15	-1	+1	+1	+1	-1	10,22	10,7	1,47
16	+1	+1	+1	+1	+1	14,99	10,0	0,20
17	0	0	0	0	0	12,05	10,2	2,73
18	0	0	0	0	0	10,37	10,3	0,57
19	0	0	0	0	0	9,15	9,5	0,23
20	0	0	0	0	0	10,40	9,8	0,70

#### 4.3.1 Análise Qualitativa da Granulação

O maior crescimento (33,11%) foi observado na corrida 1 e o menor crescimento (3,18%) resultou da corrida 14 do planejamento fatorial fracionário conforme Tabela 4.4.

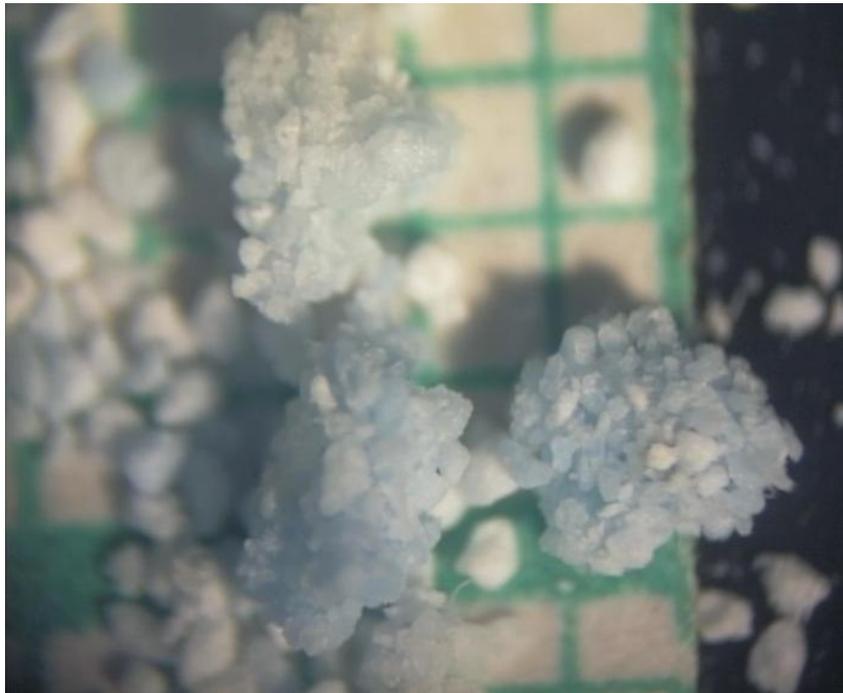
O crescimento das partículas (Equação 3.4) em cada ensaio experimental foi calculado a partir do diâmetro médio de Sauter (Equação 3.2) cujos resultados estão apresentados na Tabela 4.4.  $\bar{d}_a^s$  e  $\bar{d}_d^s$  indicam o diâmetro médio de Sauter antes e depois da granulação, respectivamente.

**Tabela 4.4 Diâmetro médio de Sauter.**

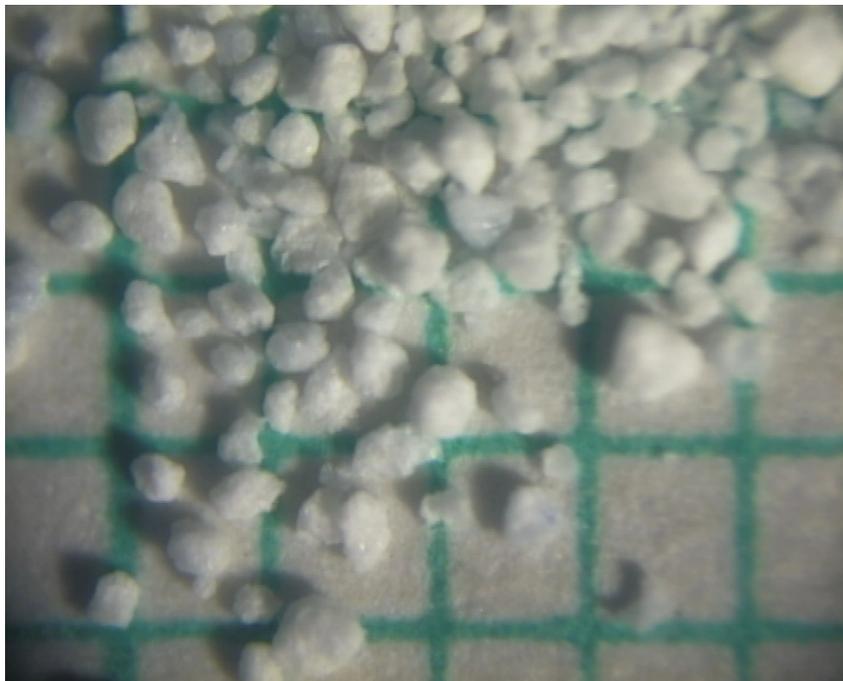
Ensaio	$\bar{d}_a^S$	$\bar{d}_d^S$
1	264,28	351,78
2	277,09	305,48
3	270,89	292,09
4	271,69	319,87
5	271,69	294,31
6	280,15	316,70
7	272,92	334,04
8	272,72	305,03
9	268,94	293,54
10	278,73	324,64
11	278,98	306,03
12	277,56	308,66
13	264,15	287,70
14	269,32	277,89
15	266,56	293,80
16	277,24	318,80
17	276,91	310,28
18	279,49	308,48
19	268,94	293,54
20	275,11	303,73

Uma diferença significativa entre os ensaios 1 e 14 foi a formação de canais preferenciais. Na corrida 1, o leito apresentou em 6 minutos uma dificuldade de movimentação das partículas e o início da formação de canais preferenciais. A Figura 4.11 ilustra um grânulo de MCC obtido nessa corrida.

Na corrida 14 (Figura 4.12) foi observado arraste de partículas para o ciclone e o material dentro do leito se apresentava com mistura vigorosa e pouca coloração em azul (por causa do corante) aos 6 minutos de aspersão de solução. Isso indica uma grande quantidade de celulose microcristalina sem granular. Ao final do experimento, foi observado visualmente que o leito ainda permitiria permanecer em regime estável sob aspersão de solução por mais tempo.



**Figura 4.11 Grânulo de MCC (ensaio 1).**



**Figura 4.12 Grânulos de MCC (ensaio 14).**

As corridas 3 e 5 apresentaram baixo crescimento, assim como a corrida 14, e chegaram aos 9 minutos de aspersão sem intermitência por causa da vazão de solução baixa nesses ensaios e, portanto, ao final do experimento, apresentaram boa taxa de circulação das partículas dentro do leito.

Já para altas vazões, houve uma maior dificuldade em se manter as partículas fluidizando, ininterruptamente, por causa do encharcamento do leito que aumenta sua massa e umidade com o tempo de aspersão.

Os aglomerados formados durante o processo, correspondem às partículas umidificadas que vão se aderindo umas às outras, através de pontes líquidas. O início da aglomeração ocorre somente se a força de ligação induzida pela ponte líquida entre as partículas for maior do que as forças de separação causadas pelas colisões ou pela força peso. Mas se os aglomerados umidificados forem muito fortes para serem fragmentados e muito grandes para serem fluidizados, então regiões do leito poderão defluidizar levando à formação de grandes aglomerados úmidos (BECHER e SCHLÜNDER, 1996; PONT et al., 2001).

Quando o leito apresentou instabilidade fluidodinâmica, a aspersão foi interrompida. Embora acontecesse intermitência, não houve necessidade em aumentar a velocidade de operação durante os experimentos. As condições vibracionais e a velocidade do ar fixas eram suficientes para restabelecer o regime de fluidização. Segundo Litster e Ennis (2004), na granulação de leitos fluidizados, a velocidade do ar fluidizante deve ser aumentada como forma de se evitar o fenômeno da defluidização (fluidização pobre e formação de canais preferenciais). Porém, essa decisão pode acarretar na diminuição de algumas respostas analisadas, como por exemplo, no crescimento das partículas, na eficiência de operação e na fração de aglomerados, conforme observado no estudo de Hemati et al. (2003).

A corrida 7 assim como a corrida 1, também apresentou a formação de canais preferenciais aos 6 minutos e houve intermitência após 7 minutos de aspersão. Pausas foram feitas com duração de 2 minutos até o reinício da fluidização das partículas cuja duração era de apenas 20 segundos. E, então, novamente o leito não fluidizava bem.

A análise do comportamento da partícula no leito vibrofluidizado foi importante para evidenciar algumas características importantes no processo como: a vazão de solução é

um parâmetro de extrema importância, pois dependendo da sua taxa de aspersão, o leito poderá apresentar ou não zonas mortas e canais preferenciais. Também foi observado visualmente que, a maioria dos aglomerados formados era proveniente do “bolo” de partículas amontoadas no bico atomizador.

Além disso, constatou-se que não houve a necessidade de se aumentar a velocidade de operação quando o regime fluidodinâmico do leito era alterado. Somente com a intermitência na aspersão da solução já era suficiente para o retorno da condição de boa fluidização do leito.

### **4.3.2 Análise Estatística**

Os efeitos das variáveis operacionais de entrada nas respostas consideradas foram analisadas com o auxílio do software STATISTICA<sup>®</sup> 7.0, onde os tratamentos dos dados foram submetidos ao critério de análise de erros pelo erro puro, que é aquele calculado a partir das corridas no ponto central. Baseado em discussão realizada por Kalil et al. (2001), o valor do erro padrão residual não seria adequado porque ele é calculado considerando-se um modelo de 2ª ordem a partir de todas as corridas experimentais do planejamento. Dessa forma, segundo Kalil et al. (2001), um planejamento fracionário ( $2^{k-1}$ ) não gera um modelo adequado, aumentando o valor do erro. Contudo, os valores dos efeitos tanto para erro padrão residual quanto para o erro puro são totalmente idênticos. As respostas do planejamento foram avaliadas considerando-se uma confiança de 95%.

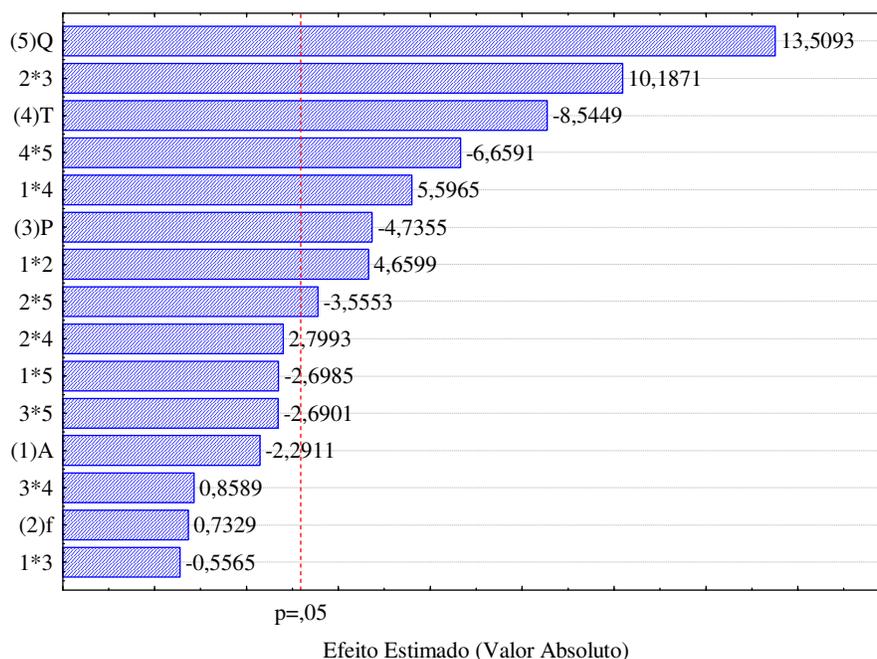
#### **4.3.2.1 Resultados para crescimento da partícula (C - %)**

A Tabela 4.5 apresenta os valores dos efeitos das variáveis e suas combinações para um limite de confiança de 95% e a Figura 4.13, o gráfico de Pareto com os efeitos padronizados das variáveis isoladas e das interações. Observa-se na Tabela 4.4 que houve reprodutibilidade no ponto central para a variável de resposta. Analisando a Tabela 4.5 e a Figura 4.13 para a resposta crescimento das partículas, observa-se que, existem além das variáveis isoladas, interações entre as variáveis independentes que são estatisticamente

significativas e, são elas: 2\*3 (f\*P), 4\*5 (T\*Q), 1\*4 (A\*T), 1\*2 (A\*f) e 2\*5 (f\*Q). Nota-se que na grande maioria das combinações encontram-se as variáveis de maiores efeitos para a resposta crescimento da partícula: Q, T e P.

**Tabela 4.5 Efeitos Estimados para crescimento da partícula.**

<i>Fator</i>	<i>Efeito</i>	<i>Erro Puro</i>	<i>Limite de confiança (-95%)</i>	<i>Limite de confiança (+95%)</i>
<i>Média/Interação</i>	12,5160	0,2662	11,6688	13,3632
(1) A	-1,3637	0,5952	-3,2581	0,5306
(2) f	0,4363	0,5952	-1,4581	2,3306
(3) P	-2,8187	0,5952	-4,7131	-0,9244
(4) T	-5,0863	0,5952	-6,9806	-3,1919
(5) Q	8,0413	0,5952	6,1469	9,9356
1*2	2,7737	0,5952	0,8794	4,6681
1*3	-0,3312	0,5952	-2,2256	1,5603
1*4	3,3313	0,5952	1,4369	5,2256
1*5	-1,6063	0,5952	-3,5006	0,2881
2*3	6,0638	0,5952	4,1694	7,9581
2*4	1,6663	0,5952	-0,2281	3,5606
2*5	-2,1163	0,5952	-4,0106	-0,2219
3*4	0,5113	0,5952	-1,3831	2,4056
3*5	-1,6013	0,5952	-3,4956	0,2931
4*5	-3,9638	0,5952	-5,8581	-2,0694



**Figura 4.13 Gráfico de Pareto para crescimento da partícula.**

Em relação aos efeitos, a variável de maior influência no crescimento das partículas foi a vazão de solução (Q), a qual apresentou um efeito positivo. Isso significa que um aumento na variável (nível -1 para +1) resulta em um maior crescimento das partículas ( $\pm 8\%$ ). Essa variável combinada com a temperatura do ar de entrada e a frequência de vibração, também se apresentou estatisticamente significativa. No primeiro caso, a diminuição da vazão de solução e o aumento da temperatura causam o efeito negativo na variável de resposta crescimento da partícula. Esse mesmo efeito é causado no segundo caso, com a diminuição de ambas as variáveis, Q e f.

Quando o leito apresentava-se muito úmido em função da aspersão da solução havia a predominância de canais preferenciais que eram quebrados pela vibração quando a vazão da solução era interrompida.

Por outro lado, no menor nível de vazão da solução granulante, não houve intermitência, ao contrário, o leito mostrava-se com bom movimento das partículas e, também, indicando que seria possível um maior tempo de aspersão, principalmente para temperatura mais altas. Porém, esses casos apresentaram baixo crescimento em porcentagem.

Já a combinação da variável pressão de atomização (P) e da frequência de vibração (f) indicou que, para o maior nível de f e menor de P é verificado um aumento na variável de resposta crescimento da partícula. Com uma pressão menor, gotas de solução granulante maiores são formadas, as quais podem atingir um maior número de partículas, diminuindo a possibilidade de elutriação da solução antes de atingir as partículas. Como a frequência de vibração facilita a secagem da solução, então grânulos maiores podem ser obtidos.

Em relação aos parâmetros vibracionais, o efeito da amplitude foi maior do que o da frequência de vibração, mas ambas as variáveis de entrada, isoladamente, não foram estatisticamente significativas para o crescimento das partículas de celulose microcristalina com 95% de confiança. E, mesmo considerando um limite de confiança de 90% (utilizado apenas para verificação da influência isolada dessas variáveis), não foram significativas para o crescimento da partícula.

Considerando a combinação entre elas (amplitude e frequência de vibração) um melhor resultado é alcançado nas mínimas condições para os parâmetros vibracionais (maior crescimento de partículas). Estas variáveis são fundamentais para um melhor

desempenho na fluidização das partículas e, também, para uma menor elutriação de celulose microcristalina durante o processo.

A massa que foi recolhida pelo ciclone em quase todos os casos foi muito pequena. A Tabela 4.6 apresenta as corridas experimentais e os valores de sua massa elutriada. As corridas que apresentaram maior massa elutriada foram a 7 (108,9g), a 8 (80,1) e a 15 (123,3).

**Tabela 4.6 Massa elutriada das corridas experimentais.**

<i>Corrida</i>	<i>Massa elutriada (g)</i>
1	8,3
2	13,5
3	17,4
4	17,1
5	16,1
6	10,0
7	108,9
8	80,1
9	12,0
10	30,8
11	8,6
12	14,1
13	6,7
14	13,4
15	123,3
16	13,5
17	12,0
18	18,8
19	11,2
20	16,0

Embora os parâmetros vibracionais diminuam a massa de finos arrastada pelo processo para o ciclone, seus efeitos não foram minimizados pela pressão de atomização nas corridas 7, 8 e 15. Nas três corridas, essa variável de entrada combinada com a frequência de vibração alta, arrastou uma grande quantidade de material para o ciclone. A corrida 16 também teve essa combinação, mas sofreu influência das combinações T\*Q e A\*T que não permitiram uma grande quantidade de massa elutriada.

O planejamento experimental fracionário foi útil para determinar as variáveis de influência no processo com isso, pode-se verificar que a vazão de solução, temperatura do ar de entrada e pressão de atomização são influentes para a resposta crescimento da

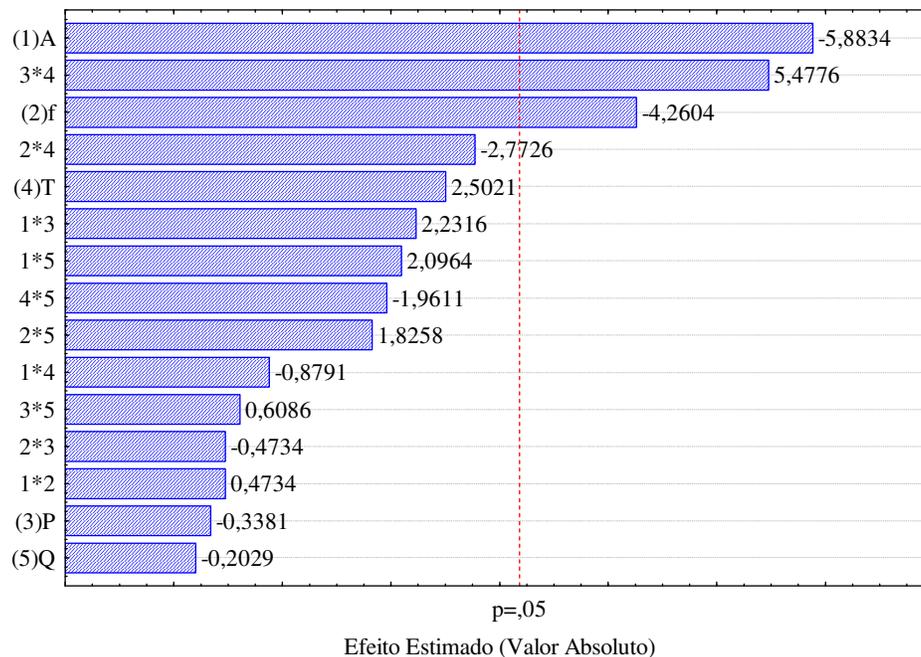
partícula (C), porém não podem ser ignoradas as demais combinações significativas que envolvem todas as variáveis independentes. Portanto, não é possível estabelecer um planejamento fatorial completo com menos variáveis para analisar a granulação de celulose microcristalina em leito vibrofluidizado.

#### 4.3.2.2 Resultados para ângulo de repouso $\alpha_r$ (°)

A resposta ângulo de repouso também foi analisada, a partir dos resultados da Tabela 4.4, utilizando o software STATISTICA<sup>®</sup> 7.0. Os efeitos das variáveis e suas interações estão apresentados na Tabela 4.7 e ilustrados no gráfico de Pareto da Figura 4.14, em que os resultados foram submetidos a um limite de confiança de 95%, também utilizando erro puro. Verifica-se a reprodutibilidade para a variável de resposta no ponto central com os seguintes resultados: 10,2°, 10,3°, 9,5° e 9,8°.

**Tabela 4.7 Efeitos Estimados para o ângulo de repouso.**

<i>Fator</i>	<i>Efeito</i>	<i>Erro Puro</i>	<i>Limite de confiança (-95%)</i>	<i>Limite de confiança (+95%)</i>
<i>Média/Interação</i>	10,1050	0,0826	9,8419	10,3680
(1) A	-1,0875	0,1848	-1,6757	-0,4992
(2) f	-0,7875	0,1848	-1,3757	-0,1992
(3) P	-0,0625	0,1848	-0,6507	0,5257
(4) T	0,4625	0,1848	-0,1257	1,0507
(5) Q	-0,0375	0,1848	-0,6257	0,5507
1*2	0,0875	0,1848	-0,5007	0,6757
1*3	0,4125	0,1848	-0,1757	1,0007
1*4	-0,1625	0,1848	-0,7507	0,4257
1*5	0,3875	0,1848	-0,2007	0,9757
2*3	-0,0875	0,1848	-0,6757	0,5007
2*4	-0,5125	0,1848	-1,1007	0,0757
2*5	0,3375	0,1848	-0,2507	0,9257
3*4	1,0125	0,1848	0,4242	1,6007
3*5	0,1125	0,1848	-0,4757	0,7007
4*5	-0,3625	0,1848	-0,9507	0,2257



**Figura 4.14 Gráfico de Pareto para o ângulo de repouso.**

Pela análise do gráfico de Pareto para a resposta ângulo de repouso com um limite de confiança de 95%, observa-se que as variáveis isoladas e a combinação de maior efeito são: amplitude de vibração, combinação 3\*4 (P\*T) e frequência de vibração. É importante notar que para essa variável de resposta os parâmetros vibracionais mostraram-se influentes isoladamente, ao invés de combinação, ao contrário do que aconteceu para a resposta crescimento da partícula.

A influência das variáveis isoladas, amplitude e frequência de vibração apresentaram sinal negativo (-) significando que um aumento nas variáveis (nível -1 para +1) conduz a um decréscimo na resposta ângulo de repouso. Segundo a Tabela 3.3, para se ter uma boa escoabilidade do material é necessário que a classificação do ângulo de repouso seja menor do que 45° (escoabilidade intermediária). Então, para que se tenham melhores resultados nessa variável de resposta, deve-se ter maior amplitude e frequência de vibração. O menor valor de ângulo para o planejamento foi de 8,4° que correspondeu às corridas 8 e 12, cujos parâmetros vibracionais estavam em seu maior nível (0,02m e 6 Hz).

Segundo a Figura 4.14, a combinação P\*T é influente e para um maior valor do ângulo de repouso é necessária maior temperatura do ar de entrada e maior pressão de atomização; entretanto, conforme discutido anteriormente, os valores de ângulo de repouso

devem ser pequenos para uma melhor fluidez, então, deve-se aumentar a pressão de atomização e diminuir a temperatura do ar de entrada.

Com o leito nas condições descritas anteriormente e com baixa vazão de solução a secagem dos grânulos é intensificada, resultando em um produto final menos coesivo.

O granulado da celulose microcristalina foi obtido a diversas condições de operação geradas pelo planejamento fatorial fracionário, contudo, o seu ângulo de repouso (8,4° a 12°) não sofreu variações de classificação (Tabela 3.3). O material antes de granular possuía um baixo valor para o ângulo de repouso, 8,5°. Em todos os casos, o material se encontra na primeira classificação, para ângulos de até 30°, ou seja, de boa escoabilidade.

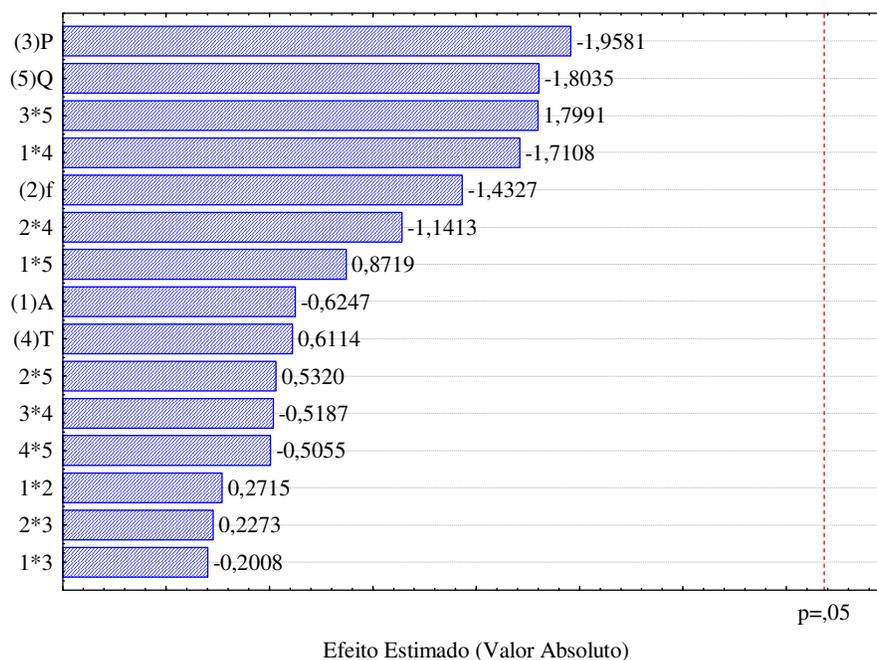
#### **4.3.2.3 Resultados para índice de aglomeração $I_{Agl}$ (%)**

Os resultados dos índices de aglomeração, apresentados na Tabela 4.4, correspondem aos valores obtidos pela equação 3.5, em porcentagem e, como as outras variáveis de resposta, também foi submetido à análise estatística utilizando o software STATISTICA<sup>®</sup> 7.0 e não apresentou boa reprodutibilidade em seus resultados. Contudo, para essa resposta, nenhuma variável de entrada ou suas interações, foram estatisticamente significativas.

Nessa resposta, o menor valor de  $I_{Agl}$  é desejável, porque estão sendo avaliados os grânulos classificados como “torrões”. A Tabela 4.8 e a Figura 4.15 apresentam os resultados dos efeitos das variáveis e suas combinações e o gráfico de Pareto, respectivamente.

**Tabela 4.8 Efeitos Estimados para o índice de aglomeração.**

<i>Fator</i>	<i>Efeito</i>	<i>Erro Puro</i>	<i>Limite de confiança (-95%)</i>	<i>Limite de confiança (+95%)</i>
<i>Média/Interação</i>	1,6360	0,2532	0,8301	2,4418
(1) A	-0,3537	0,5662	-2,1557	1,4482
(2) f	-0,8112	0,5662	-2,6132	0,9907
(3) P	-1,1087	0,5662	-2,9107	0,6932
(4) T	0,3462	0,5662	-1,4557	2,1482
(5) Q	-1,0212	0,5662	-2,8232	0,7807
1*2	0,1537	0,5662	-1,6482	1,9557
1*3	-0,1137	0,5662	-1,9157	1,6882
1*4	-0,9687	0,5662	-2,7707	0,8332
1*5	0,4937	0,5662	-1,3082	2,2957
2*3	0,1287	0,5662	-1,6732	1,9307
2*4	-0,6462	0,5662	-2,4482	1,1557
2*5	0,3012	0,5662	-1,5007	2,1032
3*4	-0,2937	0,5662	-2,0957	1,5082
3*5	1,0187	0,5662	-0,7832	2,8207
4*5	-0,2862	0,5662	-2,0882	1,5157

**Figura 4.15 Gráfico de Pareto para índice de aglomerados.**

Pela Tabela 4.8 e pela Figura 4.15 fica claro que nenhuma variável de entrada, nem combinações entre elas foi capaz de influenciar, para um limite de confiança de 95%, na quantidade de aglomerados obtidos pelos experimentos. O intervalo do índice de aglomerados foi de 0,2% a 5,69%, valor muito pequeno se comparado à massa de partículas alimentada ao leito (300g).

Foi visualmente observado que, muito desses “torrões” eram provenientes do acúmulo de solução de maltodextrina juntamente com algumas partículas de celulose microcristalina ao redor do bico atomizador e não da interação entre as partículas dentro do leito propriamente dito.

#### **4.4 Caracterização das Partículas**

Para melhor caracterizar o produto granulado, foram determinadas a distribuição granulométrica do material e a razão Hausner. Avaliou-se também, para comparação, o diâmetro médio da partícula calculado pela equação 3.3. A razão de Hausner foi calculada e relacionada com o ângulo de repouso com o intuito de ratificar a boa escoabilidade dos grânulos indicada pelos valores obtidos na Tabela 4.4.

##### **4.4.1 Análise Granulométrica**

A distribuição granulométrica do material foi realizada com o objetivo de identificar as faixas de tamanho dos grânulos formados após o processo. Para isso, o método de análise de peneiras descrito em 3.2.3.1 foi aplicado com as seguintes peneiras padronizadas: mesh 35, 48, 60, 65, 80 e 200 para antes da granulação e mesh 28, 35, 48, 60, 65, 80 e 120 para depois do processo.

A Tabela 4.9 apresenta os diâmetros médios calculados pela equação 3.3 antes ( $\bar{d}_a^{3.3}$ ) e após ( $\bar{d}_d^{3.3}$ ) a granulação e o crescimento da partícula obtido.

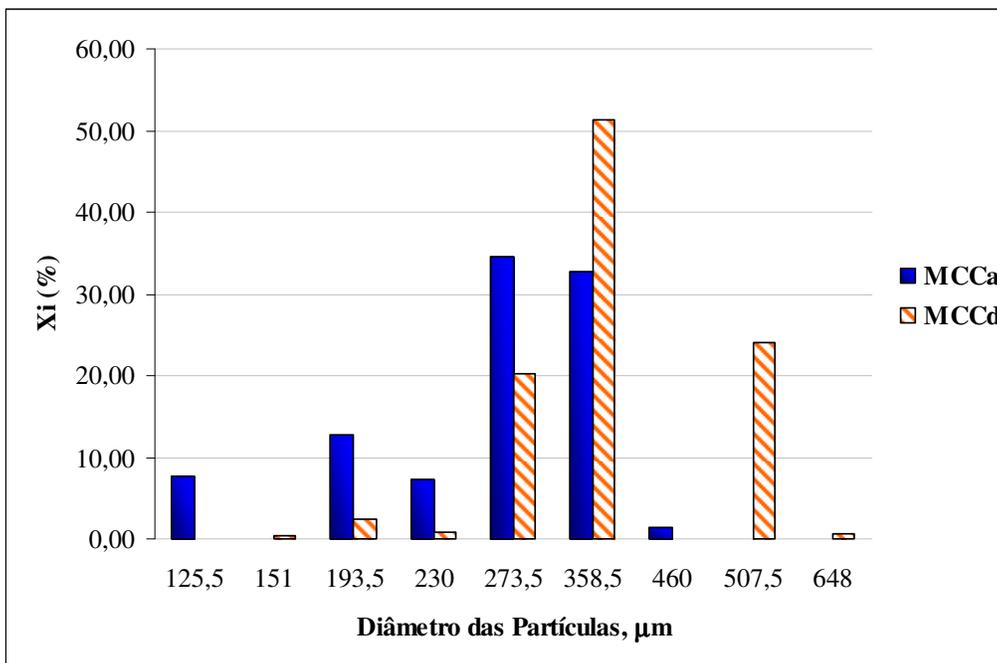
**Tabela 4.9 Diâmetro médio de acordo com a equação 3.3.**

<i>Ensaio</i>	$\bar{d}_a^{3.3}$	$\bar{d}_d^{3.3}$	$C^{3.3}(\%)$
1	279,47	373,11	33,51
2	294,53	331,85	12,67
3	288,11	315,56	9,53
4	288,82	347,41	20,29
5	288,82	317,11	9,80
6	297,77	345,25	15,95
7	290,80	369,42	27,04
8	289,97	325,49	12,25
9	284,30	313,57	10,30
10	295,86	349,78	18,23
11	296,74	328,96	10,86
12	295,06	330,16	11,89
13	279,23	316,50	13,35
14	285,41	298,01	4,41
15	281,92	313,43	11,18
16	295,35	343,19	16,20
17	294,69	334,64	13,56
18	296,63	332,57	12,12
19	284,30	313,57	10,30
20	291,22	328,16	12,68

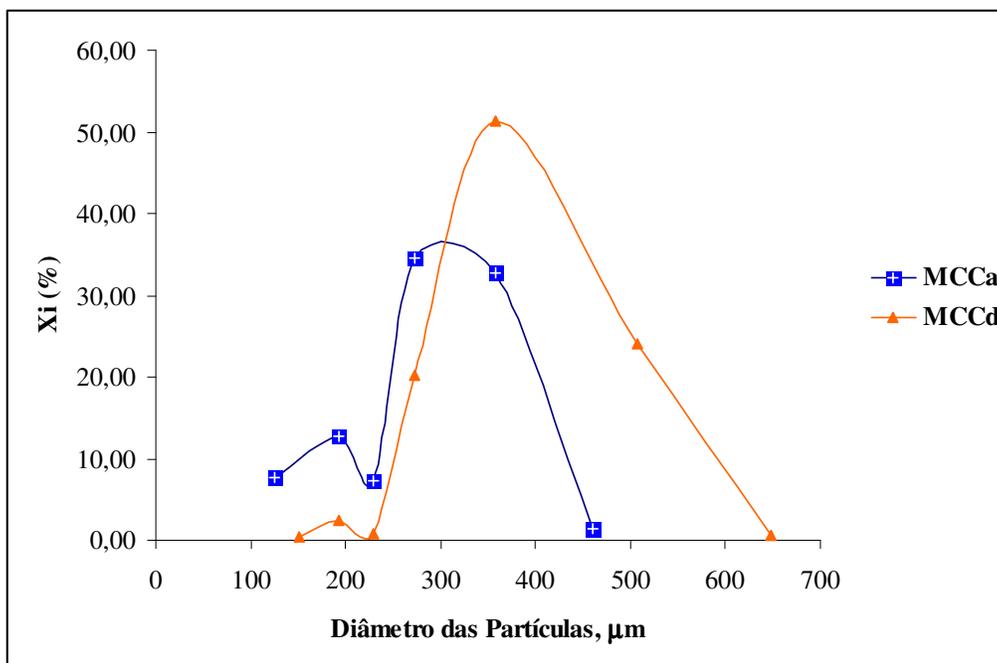
Embora as equações para o cálculo do diâmetro sejam diferentes, os resultados para o crescimento das partículas nas corridas experimentais sofreram pouca variação. Comparando os resultados de crescimento da partícula apresentados na Tabela 4.4 e na Tabela 4.9, encontra-se que a média de crescimento pelo diâmetro médio de Sauter para os 20 ensaios foi de  $12,52 \pm 6,34\%$  e pela equação 3.3 foi de  $14,31 \pm 6,51\%$ .

A diferença entre os valores médios e os desvios para o crescimento da partícula foi pequena, indicando que o cálculo do diâmetro pela equação 3.3 para a granulação de celulose microcristalina em leito vibrofluidizado também poderia ser utilizado.

A seguir são apresentadas as curvas de distribuição granulométrica dos ensaios experimentais, 1 e 14 nas Figuras 4.16 e 4.17, respectivamente. Esses ensaios são mostrados como exemplo, pois resultaram em maior e menor crescimento das partículas, respectivamente.

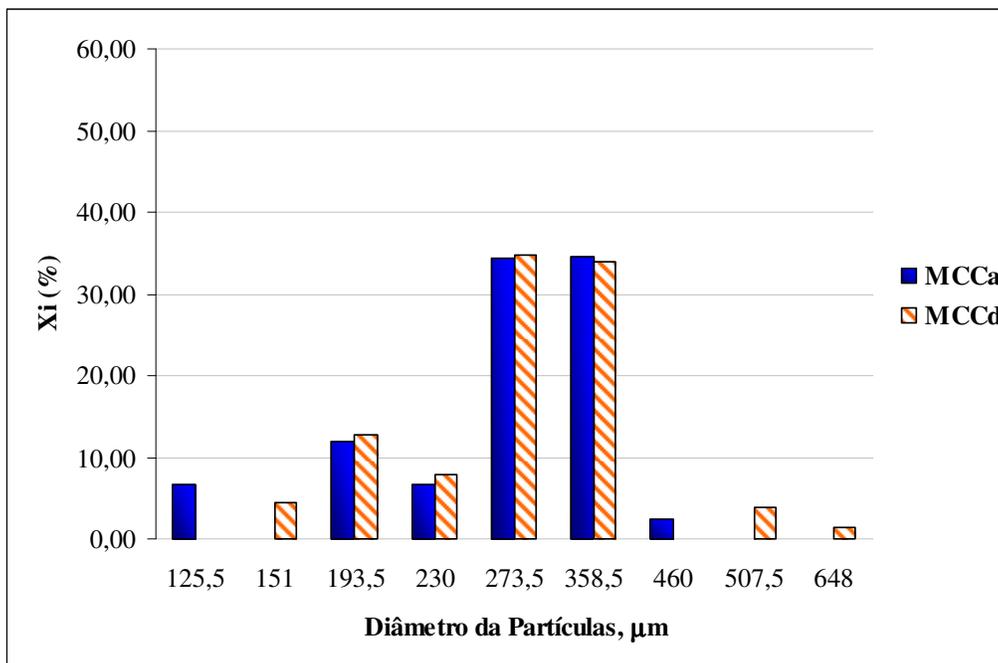


(a)

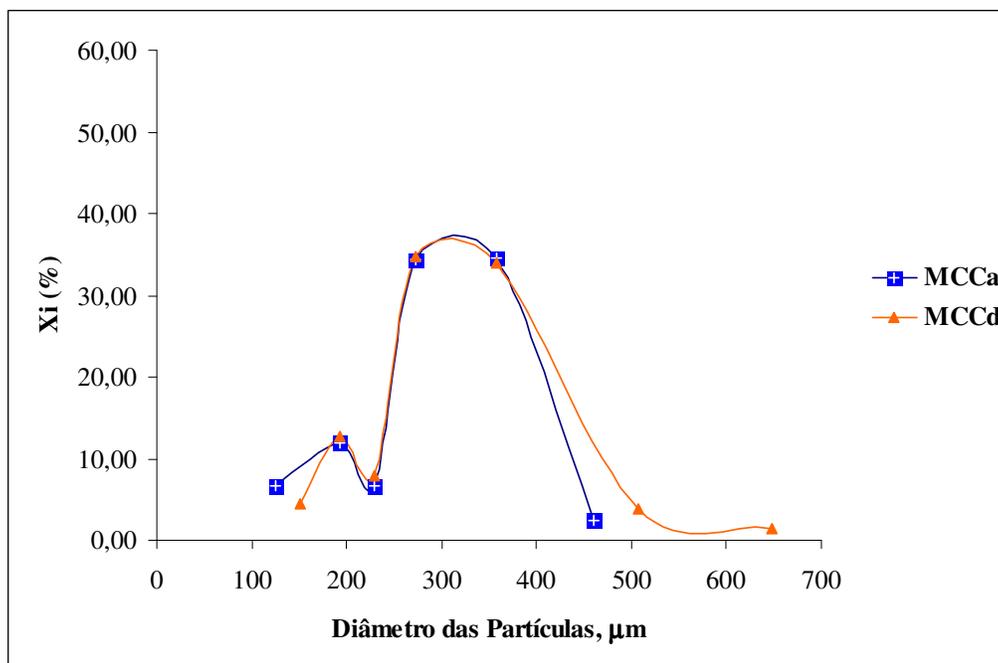


(b)

**Figura 4.16 Distribuição granulométrica (corrida 1). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição. MCC<sub>i</sub>: MCC antes e depois da granulação.**



(a)

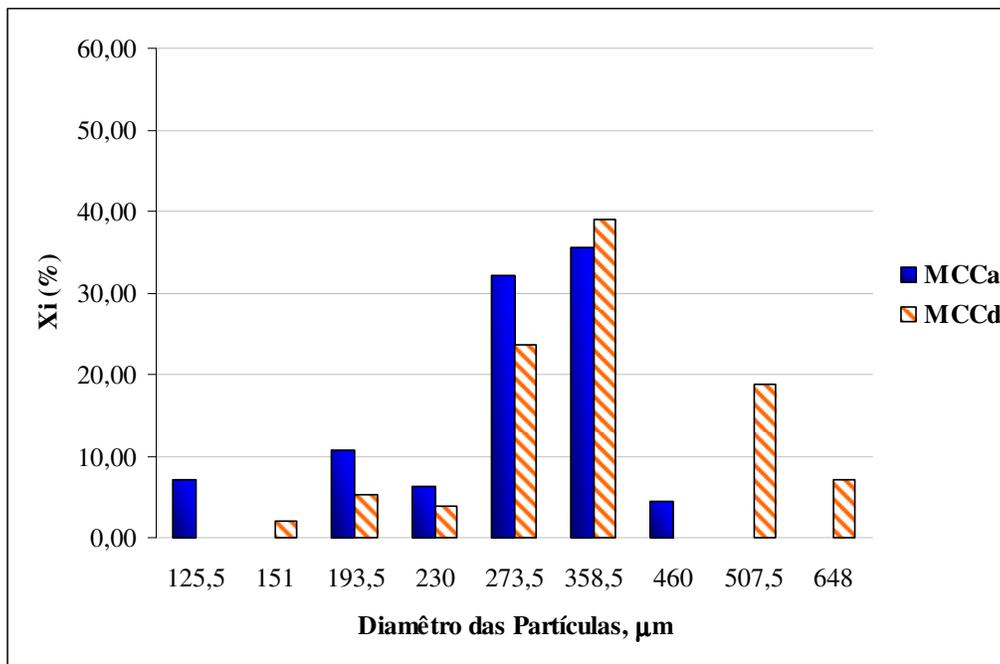


(b)

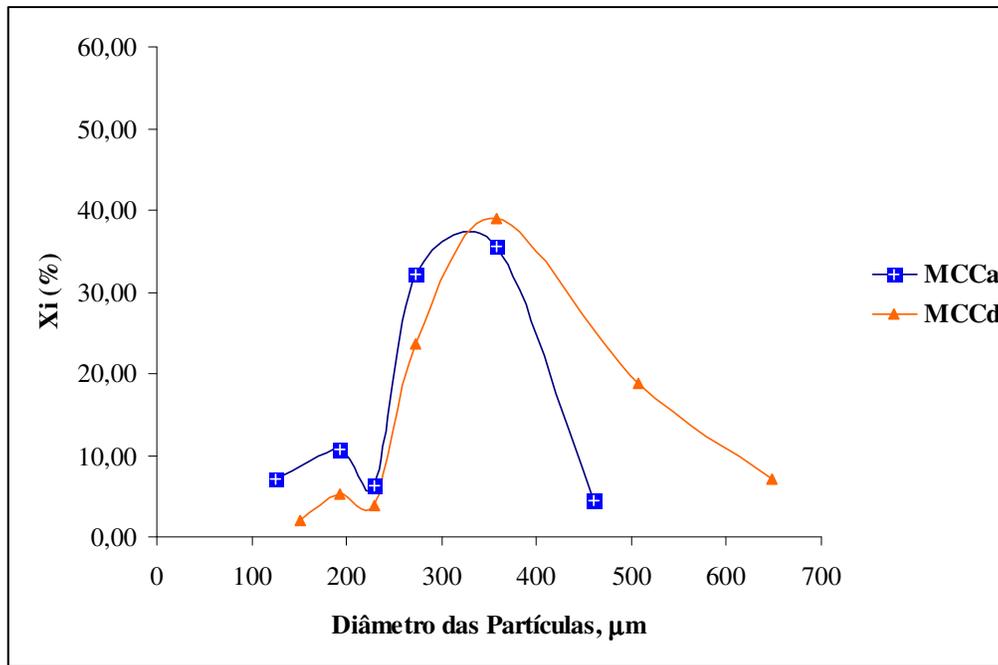
**Figura 4.17 Distribuição granulométrica (corrida 14). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição. MCC<sub>i</sub>: MCC antes e depois da granulação.**

Pela Figura 4.16, verifica-se que houve redução na fração mássica no intervalo de 125,5 a 273,5  $\mu\text{m}$  e acréscimo em 358,5 a 648  $\mu\text{m}$ , o que evidencia o crescimento da partícula; ao contrário do que mostra a Figura 4.17, onde mesmo depois da granulação a fração mássica foi praticamente igual no intervalo de diâmetros, o que gerou curvas de distribuição praticamente coincidentes.

Outro caso importante de se observar é o da corrida 7, que foi o ensaio onde ocorreu maior quantidade de massa elutriada do planejamento experimental, mas mesmo com menor quantidade de partículas no final do processo apresentou um crescimento de 22,39%. Em contraste, a corrida 8 que obteve a segunda maior quantidade de material arrastado apresentou pouco mais da metade desse crescimento, 11,85%. A diferença entre esses ensaios experimentais foi o valor de amplitude e pressão de atomização (1\*5). As Figuras 4.18 e 4.19 ilustram as distribuições granulométricas dessas duas corridas.

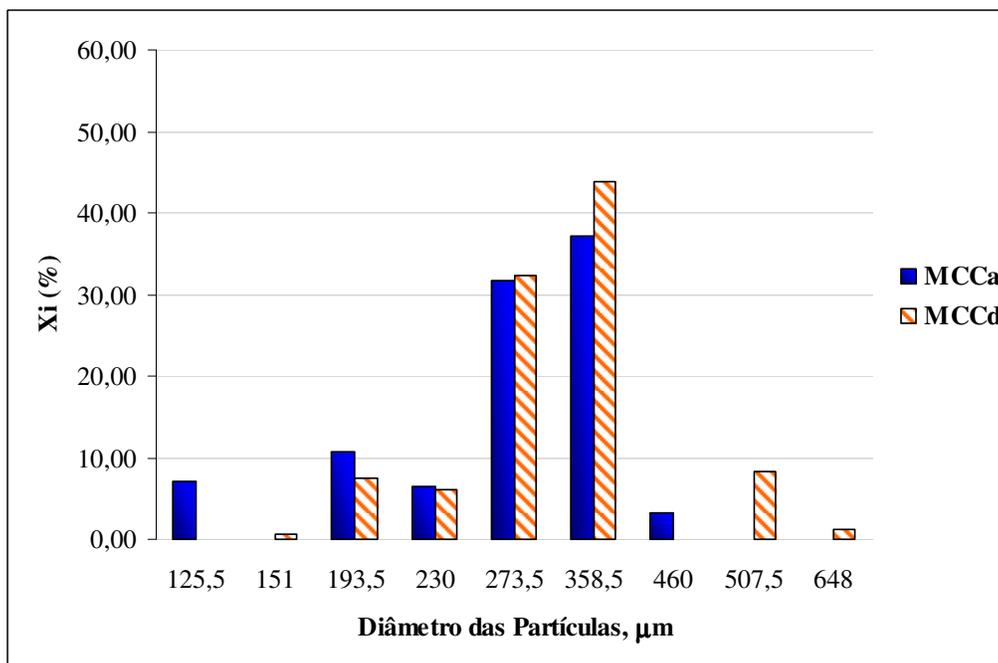


(a)

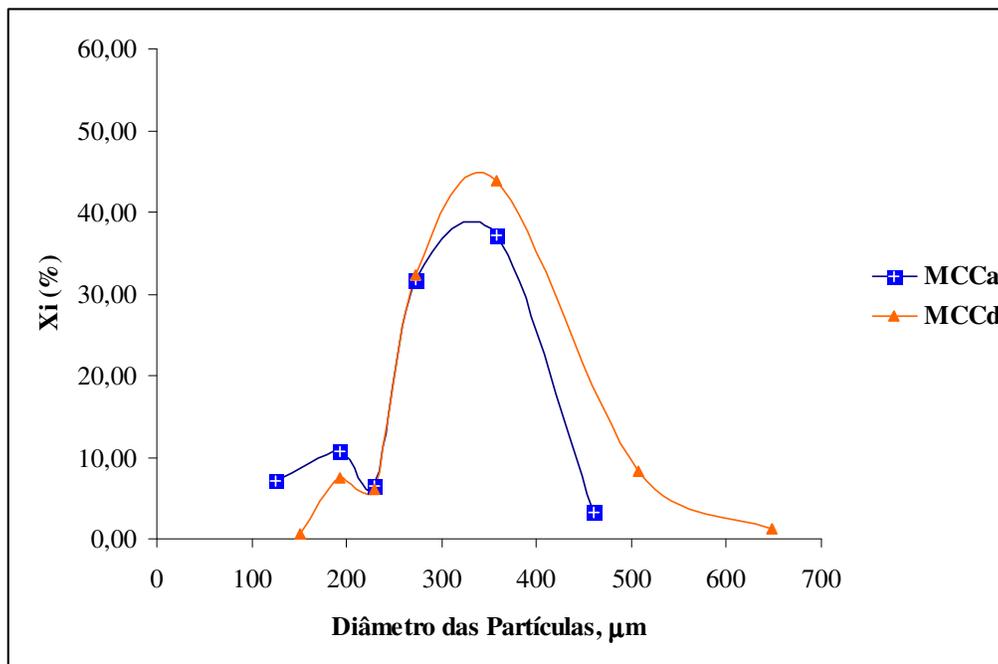


(b)

**Figura 4.18 Distribuição granulométrica (corrida 7). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição. MCC; MCC antes e depois da granulação.**



(a)



(b)

**Figura 4.19 Distribuição granulométrica (corrida 8). (a) Histograma; (b) Curva de distribuição. MCC;: MCC antes e depois da granulação.**

Em todos os casos, mesmo os de menor crescimento, verifica-se o desaparecimento de partículas na faixa de 125,5  $\mu\text{m}$  e o aparecimento de partículas nas faixas de 507,5  $\mu\text{m}$  e 648  $\mu\text{m}$ , comprovando a granulação das partículas de celulose microcristalina. Observa-se ainda o mesmo padrão de distribuição granulométrica.

#### 4.4.2 Razão Hausner

A razão Hausner foi determinada para confirmar os bons resultados encontrados para o ângulo de repouso. Essas propriedades se mostram útil para indicadores de escoamento das partículas (WONG, 2002; GELDART e WOUNTERS, 1996).

A razão foi calculada pela equação 3.6 e os valores médios para as densidades *tap* e *bulk*, e para a razão Hausner na condição da celulose microcristalina granulada estão apresentados na Tabela 4.10.

**Tabela 4.10 Média dos resultados da razão Hausner.**

<i>Corrida</i>	$\bar{\rho}_{bulk}$ (g/ml)	$\bar{\rho}_{tap}$ (g/ml)	$\overline{HR}$ (adim)	$DesvPad(\overline{HR})$
1	0,508	0,496	1,00	0,04
2	0,436	0,456	1,05	0,05
3	0,448	0,462	1,03	0,03
4	0,442	0,479	1,08	0,05
5	0,426	0,476	1,12	0,03
6	0,453	0,500	1,11	0,03
7	0,456	0,514	1,13	0,03
8	0,458	0,478	1,04	0,03
9	0,423	0,481	1,14	0,03
10	0,456	0,498	1,09	0,02
11	0,443	0,459	1,04	0,03
12	0,425	0,463	1,09	0,04
13	0,486	0,525	1,08	0,03
14	0,496	0,496	1,00	0,03
15	0,466	0,518	1,11	0,04
16	0,448	0,491	1,09	0,04
17	0,432	0,487	1,13	0,04
18	0,436	0,485	1,11	0,03
19	0,473	0,529	1,12	0,04
20	0,431	0,478	1,11	0,03

$\bar{\rho}_{bulk}$  : densidade *bulk* média;  $\bar{\rho}_{tap}$  : densidade *tap* média  $\overline{HR}$  : razão Hausner média;  $DesvPad(\overline{HR})$  : desvio padrão de  $\overline{HR}$  .

Os resultados das corridas 1 e 14, de maior e menor crescimento da partícula, foram comparados com os valores obtidos para a celulose microcristalina sem granular (MCC<sub>a</sub>) e são apresentados na Tabela 4.11.

**Tabela 4.11 Razão Hausner para MCC.**

<i>Condição</i>	$\bar{\rho}_{bulk}$	$\bar{\rho}_{tap}$	$\overline{HR}$	$DesvPad(\overline{HR})$
MCC <sub>a</sub>	0,425	0,458	1,08	0,08
Corrida 1	0,508	0,496	1,00	0,04
Corrida 14	0,496	0,496	1,00	0,03

MCC<sub>a</sub>: celulose microcristalina antes da granulação.

Os resultados da Tabela 4.10 revelam que o material é de excelente fluidez, ou seja, com uma escoabilidade classificada como aerada, o que está de acordo com a classificação encontrada para o ângulo de repouso, conforme a Tabela 3.3. Em relação à comparação do material granulado com a celulose microcristalina sem granular, a Tabela 4.11 indica que o material antes do processo apresentava boa escoabilidade, ou seja, baixo valor da razão Hausner. Conforme apresentado no capítulo 3, o baixo valor de HR ( $HR < 1,25$ ) indica que as partículas apresentam forças interpartículas fracas, e com isso, o deslizamento de umas sobre as outras é facilitado. O produto granulado apresentou ótima fluidez.

## CAPÍTULO 5

### CONCLUSÕES E SUGESTÕES

#### 5.1 Conclusões

O estudo da fluidodinâmica da celulose microcristalina mostrou que o método das retas tangentes, utilizado em leito fluidizado convencional para determinar a velocidade de mínima fluidização, só pode ser aplicado nas condições experimentais deste trabalho considerando o critério de utilizar o ponto onde a reta de leito fixo deixa de ajustar os pontos experimentais da curva  $\Delta P \times U$  (queda de pressão x velocidade do ar).

A velocidade de mínima fluidização, (desvio da curva em relação ao leito fixo) foi, em praticamente todos os experimentos fluidodinâmicos, inferior à velocidade de mínima mistura indicando expansão do leito antes do movimento.

A velocidade de mínima mistura determinada para as condições experimentais foi baixa, o que não garante a fluidização de todas as partículas no leito.

A velocidade de mínima fluidização completa foi usada como referência para os ensaios de granulação por apresentar regime dinâmico de fluidização estável com boa taxa de circulação das partículas.

Para determinar a velocidade de mínima fluidização com vibração deve-se analisar a curva fluidodinâmica ( $\Delta P \times U$ ), porém ainda é necessário associá-la com as observações visuais relacionadas ao movimento das partículas, para assim, definir a velocidade de operação.

Os ensaios preliminares foram necessários para definir os níveis das variáveis de processo: amplitude e frequência de vibração, pressão de atomização, temperatura do ar de entrada e vazão de solução, bem como para definir a altura do bico atomizador no leito vibrofluidizado e o tempo total de aspersão de solução. Estes dois últimos permaneceram fixos durante os experimentos.

O planejamento experimental fracionário  $2^{5-1}$  revelou quais são as variáveis e combinações de influência significativa no processo de granulação da celulose microcristalina em leito vibrofluidizado, para nível de confiança de 95%.

Para a variável de resposta do planejamento, crescimento da partícula, as variáveis críticas no processo são: vazão de solução (Q), temperatura do ar de entrada (T), pressão de atomização (P), e as combinações  $f^*P$ ,  $T^*Q$ ,  $A^*T$ ,  $A^*f$  e  $f^*Q$ .

A corrida de maior aumento da partícula (33% acima do valor inicial) é a corrida 1, que apresenta as seguintes condições operacionais: menor amplitude, frequência, temperatura e pressão de atomização e maior vazão de solução.

Para a resposta ângulo de repouso, as variáveis de entrada influentes são: amplitude e frequência de vibração e a combinação  $P^*T$ . Nesse caso, os parâmetros vibracionais foram significativos isoladamente.

A redução do ângulo de repouso favorece a escoabilidade do material. Nesse caso, é necessário utilizar maior amplitude e frequência de vibração e avaliar uma combinação adequada de  $P^*T$ , pois o efeito dessas variáveis isoladamente, influencia o crescimento do grânulo; contudo a combinação dessas não apresenta efeito significativo nessa resposta. O maior ângulo de repouso do planejamento mede  $12^\circ$ , e ainda pertence à classificação de excelente escoabilidade.

Pode-se concluir que os resultados relativos à escoabilidade em todas as condições foram bastante satisfatórios.

Para a resposta índice de aglomerados, nenhuma das cinco variáveis ou suas interações, se mostrou estatisticamente significativa.

Não há diferença significativa entre os dois métodos utilizados para o cálculo dos diâmetros médios. Para a média Sauter, o crescimento médio da partícula para os 20

ensaios foi de  $12,52 \pm 6,34\%$  e para o diâmetro médio calculado por  $d_p^{3,3} = \frac{\sum_i X_i d_{pi}}{\sum_i X_i}$ , o

crescimento médio foi de  $14,31 \pm 6,51\%$ .

A razão Hausner ratificou os bons resultados encontrados para o ângulo de repouso: a celulose microcristalina granulada é de excelente escoabilidade.

## 5.2 Sugestões para trabalhos futuros

Como sugestões para trabalhos futuros são citadas:

- a) Realizar um planejamento fatorial completo, com a sugestão de se fixar as variáveis, amplitude e frequência de vibração, para se obter um modelo de crescimento para o processo de granulação;
- b) Analisar o processo de granulação em outro tipo de equipamento, como por exemplo, leito fluidizado pulsado rotativo (LFPR);
- c) Estudar as ligações predominantes nos aglomerados formados na granulação em leito vibrofluidizado, determinando o mecanismo de granulação.

## CAPÍTULO 6

### REFERÊNCIAS

ABUAF, N.; GUTFINGER, C. Experimental coating and heat transfer studies in a vibrating fluidized bed. **Int. J. Multiphase Flow**, v.1, p. 683-695, 1974.

AVALTRONI, F. et al. Maltodextrin molecular weight distribution influence on the glass transition temperature and viscosity in aqueous solutions. **Carbohydrate Polymers**, 58, pp. 323-334, 2004.

BAERNS, M. Effect of interparticle adhesive forces on fluidization of fine particles. **Ind. Eng. Chem. Fundamen.**, 5 (4), pp. 508-516, 1966.

BATISTA, O. A. Cellulose, Microcrystalline. **Encyclopedia of Polymer Science and Technology**. New York, 1965. v. 3 p. 285.

BENALI, M.; GERBAUD, V.; HEMATI, G.M. Effect operating conditions and physico-chemical properties on the wet granulation kinetics in high shear mixer. **Powder Technology**, 2008. doi: 10.1016/j.powtec.2008.04.082.

BOX, G.E.P.; HUNTER, W.G.; HUNTER, J.S. **Statistics for experiments. An introduction to design, data analysis, and model building**. John Wiley & Sons, Chapter 12, pp. 374, 1978.

BRATU, E.; JINESCU, G.I. Effect of vertical vibrations on the pressure drop in a fluidized layer. **British Chemical Engineering**, London, v.16, n. 8, pp. 691-695, 1971.

BRATU, E.; JINESCU, G.I. Heat transfer in vibrated fluidized layers. **Revue Roumaine de Chimie**, Bucharest, v. 17, n. 1-2, pp. 49-56, 1972.

BRUNS, R.E. et al. **Como fazer experimentos: pesquisa e desenvolvimento na ciência e na indústria**. Editora da Unicamp, Campinas, 2ª ed. 401p., 2003.

COLACIOPPO, R.C.; FORMIGARI, C.R. Curso **Planejamento de Experimentos Avançado**, maio a junho de 1997. 70f. Notas de Aula. Mimeografado.

CHEN, Y. et al. Fluidized bed filme coating of cohesive Geldart group C powders. **Powder Technology**, 2008, doi: 10.1016/j.powtec.2008.08.002.

CHEN, Y. et al. Granulation of cohesive Geldart group C powders in a mini-glatt fluidized bed by pre-coating with nanoparticles. **Powder Technology**, 191, pp. 206-217, 2009.

CHEN, Y.; LIN, P.; PENG, Y. Particle agglomeration characteristics in vibro-fluidized bed dryers. **Journal of Chemical Engineering of Japan**, v. 24, n.5, pp. 669-673, 1991.

CHRONAKIS, I.A. On the molecular characteristics, compositional properties, and structural-functional mechanisms of maltodextrins: A review. *Critical Reviews in Food Science*, v. 38, n. 7, pp. 599-637, 1998.

COSTA, M.A. **Peletização de sementes de brócolos em leito de jorro cônico**. 2003. 209p. Tese (Doutorado em Engenharia Química). Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2003.

CUNHA, R.L.G. **Caracterização fluidodinâmica no recobrimento de celulose microcristalina em leito fluidizado**. 2004. 106p. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química). Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2004.

CUNHA, R.L.G.; PEREIRA, M.M.C.; ROCHA, S.C.S. Granulação de pós utilizando a técnica de leito fluidizado com tubo interno. In: **XXXIII Congresso Brasileiro de Sistemas Particulados (ENEMP)**, 2007, Aracaju – SE.

DALEFFE, R.V. **Contribuições para a análise do comportamento fluidodinâmico de um leito vibrofluidizado**. 2005. 334p. Tese (Doutorado em Engenharia Química). Centro de Ciências Exatas e de Tecnologia, Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2005.

DALEFFE, R.V.; FREIRE, J.T. Analysis of the fluid-dynamic behavior of fluidized and vibrofluidized bed containing glycerol. **Brazilian Journal of Chemical Engineering**, v.21, n. 01, p. 35-46, 2004.

DANIELSEN, S.; HOVMAND, S. **Drying'80**, v.1, pp. 194-199, 1980.

DELLA TONIA JR.; FREIRE, J.T. Leito vibrofluidizado I – Desenvolvimento do equipamento e testes preliminares. In: **Anais do XVII Congresso Brasileiro de Sistemas Particulados**, 1989, São Carlos – SP. 307-311p.

DOKIC, P. et al. Molecular characteristics of maltodextrins and rheological behaviour of diluted and concentrated solutions. **Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects**, 141, pp. 435-440, 1998.

DREU, R. et al. Physicochemical properties of granulating liquids and their influence on microcrystalline cellulose pellets obtained by extrusion-spheronisation technology. **International Journal of Pharmaceutics**, 291, p. 99-111, 2005.

DURY, C.M. et al. Boundary effects on the angle of repose in rotating cylinders. *Physical Review*, v. 57, n. 4, abril, pp. 4491-4497, 1998.

ÉRDESZ, K. Hydrodynamic studies on vibrated fluidized beds. **Powder Handling & Processing**, Germany, v. 2, n.4, p. 327-339, 1990.

ÉRDESZ, K.; MUJUMDAR, A.S. Hydrodynamic aspects of conventional and vibrofluidized beds – a comparative evaluation. **Powder Technology**, 46, pp.167-172, 1986.

EL-SAKHAWY, M.; HASSAN, M. L. Physical and mechanical properties of microcrystalline cellulose prepared from agricultural residues. **Carbohydrate Polymers**, v.67, p. 1-10, junho, 2006.

FERREIRA, L.F.V. ; LEMOS, M.J. ; WINTGENS, V., FERREIRA-NETTO, J.C. A técnica da reflectância difusa aplicada ao estudo da fluorescência de 2,3-naftalimidaz n-substituídas com grupos alquila incluídas em b-ciclodextrina e adsorvidas em celulose microcristalina. **Química Nova**, v. 22, n.4, p.522-528, 1999. Disponível em: < <http://quimicanova.sbq.org.br/qn/qnol/1999/vol22n4/index.htm> > . Acesso em: 07/11/2007.

FOUST, A.S. et al. **Princípios das operações unitárias**. Traduzido por Horacio Macedo. Rio de Janeiro: Livros Técnicos e Científicos, 1982. 670p.

GELDART, D. **Gas fluidization technology**. Great Britain: John Wiley & Sons Ltd., 1986. 468p.

GELDART, D. Types of gas fluidization. **Powder Technology**. v 7, p. 285-292, 1973.

GELDART, D.; HARNBY, N.; WONG, A.C. Fluidization of cohesive powders. **Powder Technology**, 37, p. 25-37, 1984.

GUPTA, R.; MUJUMDAR, A.S. Aerodynamic and thermal characteristics of vibrated fluid beds - A Review. **Drying 80'**, Hemisphere Publishing Corporation, 1, p. 141-150, New York, 1980a.

GUPTA, R.; MUJUMDAR, A.S. Aerodynamics of a vibrated fluid bed. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, Ottawa, 58, p. 332, 1980b.

HAHNE, L.C.C. **Estudo experimental da caracterização e do processamento do leite em pó em leitos vibrofluidizados**. 2001. 214p. Dissertação (Mestrado). Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 2001.

HAHNE, L.C.C.; PASSOS, M.L. O índice de Hausner na identificação dos regimes de escoamento de partículas coesivas em leito vibro-fluidizado. **Anais XXIX Congresso Brasileiro de Sistemas Particulados (ENEMP)**. Belo Horizonte, v.1, pp. 1-8, 2001.

HAUSNER, H.H. Friction conditions in a mass of metal powder. **International Journal of Powder Metallurgy**, v. 3, n. 4, pp. 7-13, 1967.

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

HU, X.; CUNNINGHAM, J.C., WINSTEAD, D. Study growth kinetics in fluidized bed granulation with at-line FBRM. **International Journal of Pharmaceutics**, v. 347, pp. 54-61, 2008.

IVESON, S.M. Nucleation, growth and breakage phenomena in agitated wet granulation processes: a review. **Powder Technology**, 117, pp. 3-39, 2001.

JACKSON, K.; YOUNG, D.; PANT, S. Drug-exciipient interaction and their affect on absorption. **Research Focus**, v.3, p. 336-345, 2000.

JINESCU, G.I. **Rev. Roum. Chim.** V. 16, n. 8, pp. 1255-1268, 1971.

JINESCU, G.I. et al. Hydrodynamic aspects at vibrated-fluidized drying of polydisperse powdery materials. **Proceedings of the 12<sup>th</sup> International Drying Symposium IDS 2000**, pp. 28-31, Agosto, 2000, CD-ROOM.

JOHANSSON, B.; ALDERBORN, G. The effect of shape and porosity on the compression behaviour and tablet forming ability of granular materials formed from microcrystalline cellulose. **European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics**, 52, p. 347-357, 2001.

JOHANSSON, B.; WIKBERG, R.; EK, R.; ALDERBORN, G. Compression behaviour and compactability of microcrystalline cellulose pellets in relationship to their pore structure and mechanical properties. **Int. J. Pharm.** 117, p. 57-53, 1995.

JONG, J.A.H.; HOFFMANN, A.C.; FINKERS, H.J. Properly determine powder flowability to maximize plant output. **Chem. Eng. Progress**. Powder flowability, v. 95, n.4, abril, 1999.

KADAM, L.K. **Granulation technology for bioproducts**. Boston: CRC – Press, 336p. 1991.

KALIL, S.J. et al. Optimization of inulinase production by *Kluyveromyces marxianus* using factorial design. **Applied Biochemistry and Biotechnology**, v. 94, pp. 257-264, 2001.

KNOWLTON, et al. The importance of storage, transfer and collection. **Chemical Engineering Progress**, 90, pp. 44-54, 1994.

KUIPERS, N.J.M.; STAMHUIS, E.J.; BEENACKERS, A.A.C.M. Fluidization of potato starch in a stirred vibrating fluidized bed. **Chemical Engineering Science**, v. 51, n. 11, pp. 2727-2732, 1996.

KUNII, D.; LEVENSPIEL, O. **Fluidization engineering**. 2.ed. New York: John Wiley, 1991. 489p.

LITSTER, J.D. Scale-up of wet granulation process: science not art. **Powder Technology**, 130, pp. 35-40, 2003.

LITSTER, J.; ENNIS, B. **The science and engineering of granulation processes**. Netherlands: Kluwer Academic Publishers, 250p., 2004.

MALHOTRA, K.; MUJUMDAR, A.S. Flow patterns for cylinders immersed in a aerated vibrated bed. **The Canadian Journal of Chemical Engineering**, v. 63, pp. 22-28, 1985.

MARRING, E.; HOFFMANN, A.C.; JANSSEN, L.P.B.M. The effect of vibration on the fluidization behaviour of some cohesive powders. **Powder Technology**, 79, pp. 1-10, 1994.

McLAUGHLIN, L.J.; RHODES, M.J. Prediction of fluidized bed behaviour in the presence of liquid bridges. **Powder Technology**, 114, pp. 213-223, 2001.

MOLERUS, O. Interpretation of Geldart's type A, B, C and D powders by taking into account interparticle cohesion forces. **Powder Technology**, 33, pp. 81-87, 1982.

MORSE, R.D. **Ind. & Engg. Chem.** V. 47, n. 6, pp. 1170-1180, 1955.

MUSHTAYEV, V.I. et al. **Chemical and Petroleum Engineering**, n. 12, pp. 1083-1085, 1973. In: ERDÉSZ, K. (1990). Hydrodynamic studies on vibrated fluidized beds. *Powder Handling & Processing, Germany*, v. 2, n. 4, pp. 327-339.

NIENOW, A.W.; ROWE, P.N. Particle growth and coating in gas-fluidized beds. In: J. Davidson (Ed.), **Fluidization**, Academic Press, London, 1985.

OULAHNA, D.; CORDIER, F.; GALET, L.; DODDS, J.A. Wet granulation: the effect of shear on granule properties. **Powder Technology**, 130, pp. 238-246, 2003.

OWER, E.; PANKHURST, R. C. **The Measurement of Air Flow**, 5. ed. New York: Pergamon Press, 1977, 362p.

PAKOWSKI, Z.; MUJUMDAR, A.S.; STRUMILLO, C. Theory and application of vibrated beds and vibrated fluid beds for drying process. In: MUJUMDAR, A.S. (Ed.) **Advances in drying**. New York, v. 3, p. 245-306, 1984.

PERRY, R.; GREEN D. **Perry's Chemical Engineers' Handbook**, 7<sup>th</sup> ed, McGraw-Hill, New York, 1997, pp. 20-56-20-89.

PONT, V.; SALEH, K.; STEINMETZ D.; HÉMATI, M. Influence of the physicochemical properties on the growth of solid particles by granulation in fluidized bed. **Powder Technology**, v. 120, p. 97-104, 2001.

RIETEMA, K. Powders, what are they?. **Powder Technology**. 37, p. 5-23, 1984.

RINGER, D. U.; MUJUMDAR, A.S. Analysis of aerodynamics and heat transfer in vibro-fluidized beds. **Drying Technology**. v.2, n4, p. 449-470, 1984.

SCHAEFER, T.; MATHIESEN, C. Melt pelletization in a high shear mixer: IX. Effects of binder particle size. **Int. J. Pharm.**, 139, 1996

SEVILLE, J.P.K.; CLIFT, R. The effect of thin liquid layers on fluidization characteristics. **Powder Technology**, 37, pp. 117-129, 1984.

SILVA, C.C.; SILVA MORIS, V.A.; ROCHA, S.C.S. Influência da amplitude e frequência de vibração na fluidodinâmica de ácido adípico em leito vibrofluidizado. **VII Congresso Brasileiro de Engenharia Química em Iniciação Científica**, São Carlos – SP, 2007.

SILVA MORIS, V. A.; **Fluidodinâmica e secagem do ácido adípico em leito vibrofluidizado**, 2002. 195p. Tese (Doutorado em Engenharia Química). Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2002.

SILVA MORIS, V.A.; ROCHA, S.C.S. Development of a vibrofluidized bed and fluid-dynamic study with dry and wet adipic acid. **Brazilian Journal of Chemical Engineering**, v.20, n.04, p.423-434, 2003.

SILVA MORIS, V.A.; ROCHA, S.C.S. Vibrofluidized Bed Drying of Adipic Acid. **Drying Technology**, 24, p. 303-313, 2006.

SILVA, O.S.; ROCHA, 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**, v21, n2, pp. 325-333, 2004.

STRUMILLO, C.; PAKOWSKI, Z. Drying of granular products in vibrofluidized beds. In: Drying' 80, Proceedings of 2<sup>nd</sup> **International Drying Symposium (IDS'80)**, Montreal, Canada. Hemisphere Publishing Corporation, New York, v. 1, pp. 211-226.

STULZER, H.K.; TAGLIARI, M.P. Avaliação da compatibilidade entre a fluoxetina e excipientes usados na fabricação de cápsulas pela farmácia magistral. **Visão Acadêmica**. v7, n1, 2006. Disponível em: < <http://ojs.c3sl.ufpr.br/ojs2/index.php/academica/article/view/8951/6294> >. Acessado em: 12/02/2009.

TAKEITI, C.Y. **Estudo da influência da transição vítrea sobre a instantaneização de maltodextrinas por processo de aglomeração úmida**, 2007. 171p. Tese (Doutorado em Engenharia de Alimentos). Faculdade de Engenharia de Alimentos, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2007.

TEUNOU, E. et al. Characterisation of food powder flowability. **Journal of Food Engineering**, 39, pp. 31-37, 1999.

WESTERMARCK, S.; JUPPO, A.M.; KERVINEN, L.; YLIRUUSI, J. Microcrystalline cellulose and its microstructure in pharmaceutical processing. **European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics**. 48, p. 199-206, 1999.

WONG, A.C. Use of angle of repose and bulk densities for powder characterization and the prediction of minimum fluidization and minimum bubbling velocities. **Chemical Engineering Science**, 57, pp. 2635-2640, 2002.

WORMSBECKER, M.; PUGSLEY, T. The influence of moisture on the fluidization behaviour of porous pharmaceutical granule. **Chemical Engineering Science**, 63, pp. 4063-4069, 2008.

WOUTERS, I.M.F.; GELDART, D.; Characterising semi-cohesive powders using angle of repose. **Part. Part. Syst. Charact.**, 13, pp. 254-259, 1996.