



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

**JULIANA GOMES ROSA**

**AGLOMERAÇÃO DE GOMA ARÁBICA EM LEITO  
FLUIDIZADO: ANÁLISE DOS PARÂMETROS DO  
PROCESSO E DA VIABILIDADE DE UTILIZAÇÃO DE  
INULINA COMO LIGANTE**

CAMPINAS

2019

**JULIANA GOMES ROSA**

**AGLOMERAÇÃO DE GOMA ARÁBICA EM LEITO  
FLUIDIZADO: ANÁLISE DOS PARÂMETROS DO  
PROCESSO E DA VIABILIDADE DE UTILIZAÇÃO DE  
INULINA COMO LIGANTE**

*Tese apresentada à Faculdade de  
Engenharia Química da Universidade  
Estadual de Campinas como parte dos  
requisitos exigidos para obtenção do título  
de Doutora em Engenharia Química.*

Orientador: Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto

ESTE EXEMPLAR CORRESPONDE À VERSÃO FINAL  
DA TESE DEFENDIDA PELA ALUNA JULIANA  
GOMES ROSA, E ORIENTADA PELO PROF. DR.  
OSVALDIR PEREIRA TARANTO.

CAMPINAS

2019

Ficha catalográfica  
Universidade Estadual de Campinas  
Biblioteca da Área de Engenharia e Arquitetura  
Rose Meire da Silva - CRB 8/5974

R71a Rosa, Juliana Gomes, 1984-  
Aglomeração de goma arábica em leito fluidizado: análise dos parâmetros do processo e da viabilidade de utilização de inulina como ligante / Juliana Gomes Rosa. – Campinas, SP : [s.n.], 2019.

Orientador: Osvaldir Pereira Taranto.  
Tese (doutorado) – Universidade Estadual de Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

1. Aglomeração. 2. Leito fluidizado. 3. Goma arábica. 4. Inulina. 5. Determinação de tamanho de partícula. I. Taranto, Osvaldir Pereira, 1963-. II. Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de Engenharia Química. III. Título.

Informações para Biblioteca Digital

**Título em outro idioma:** Gum arabic fluidized bed agglomeration : process parameters analysis and analysis of the feasibility of inulin use as a binder

**Palavras-chave em inglês:**

Agglomeration

Fluidized bed

Gum arabic

Inulin

Particle size determination

**Área de concentração:** Engenharia Química

**Titulação:** Doutora em Engenharia Química

**Banca examinadora:**

Osvaldir Pereira Taranto

Rafael Augustus de Oliveira

Guilherme José de Castilho

Marcello Nitz da Costa

Wanderley Pereira de Oliveira

**Data de defesa:** 01-07-2019

**Programa de Pós-Graduação:** Engenharia Química

**Identificação e informações acadêmicas do(a) aluno(a)**

- ORCID do autor: <https://orcid.org/0000-0002-5247-3622>

- Currículo Lattes do autor: <http://lattes.cnpq.br/1879814643140783>

## FOLHA DE APROVAÇÃO

Tese de doutorado defendida por Juliana Gomes Rosa e aprovada em 1º de julho de 2019 pela banca examinadora constituída pelos doutores:

Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto – Orientador  
Faculdade de Engenharia Química – UNICAMP

Prof. Dr. Rafael Augustus de Oliveira  
Faculdade de Engenharia Agrícola – UNICAMP

Prof. Dr. Guilherme José de Castilho  
Faculdade de Engenharia Química – UNICAMP

Dr. Marcello Nitz da Costa  
Instituto Mauá de Tecnologia

Dr. Wanderley Pereira de Oliveira  
Faculdade de Ciências Farmacêuticas de Ribeirão Preto – USP

ATA da Defesa com as respectivas assinaturas dos membros encontra-se no SIGA/Sistema de Fluxo de Dissertação/Tese e na Secretaria do Programa da Unidade.

## DEDICATÓRIA

Dedico este trabalho à minha mãe Mariza e ao meu esposo Marcel. Dedico também ao pai João de quem sinto muitas saudades e à Maria Júlia a quem eu espero com muita alegria.

## AGRADECIMENTOS

À Deus por conceder saúde e força para realização e superação das adversidades durante a realização deste trabalho.

À Marcel pelo companheirismo, amor, apoio diário, paciência e incentivo nos momentos de desânimo e dificuldades e também por compreender a minha ausência em alguns momentos.

À minha mãe que é grande incentivadora dos meus estudos e quem possibilitou esta conquista por meio de muita renúncia e dedicação ao longo da vida.

Aos meus irmãos pela amizade e apoio.

Ao professor Osvaldir por sua orientação, pelos ensinamentos e contribuições para o desenvolvimento deste trabalho.

Aos professores que fizeram parte da minha vida acadêmica até o presente momento contribuindo e me incentivando profissionalmente.

Aos professores membros da banca pelas valiosas contribuições para melhoria e pela avaliação do trabalho.

Aos amigos do LPTF e da FEQ em especial a Kaciane pela disponibilidade em ajudar e contribuir para este trabalho e ao Raul e a Mari pela amizade, contribuições e ajuda sempre que precisei.

Às minhas amigas, em especial Carol e Shisa, que mesmo a distância, além sempre acreditarem em mim, me apoiaram durante esses anos com atenção e palavras motivadoras.

Ao Instituto Federal do Espírito Santo (Ifes) por conceder o necessário afastamento das atividades para realização deste trabalho e aos meus colegas servidores do campus Vila Velha – ES que contribuíram para que o meu afastamento fosse possível e em especial a Denise Rocco pelo incentivo.

Aos colaboradores da FEQ/UNICAMP, Cepetro e do Laboratório de Colóides e Superfícies que contribuíram para realização deste trabalho.

E por fim à Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) – pelo apoio financeiro a este projeto sob o código de Financiamento 001, processo de número 88882.329657/2019-01.

## RESUMO

O objetivo deste trabalho foi estudar o processo de aglomeração de goma arábica em leite fluidizado utilizando solução de goma arábica e solução de inulina como ligantes, para obter um produto instantâneo que associasse inulina à goma arábica, e avaliar a qualidade do produto. Além disso realizar o monitorando em tempo real o tamanho das partículas de modo a melhor compreender os efeitos dos parâmetros do processo no crescimento das partículas. Foi utilizado planejamento composto central rotacional para estudo do processo de aglomeração. As variáveis independentes estudadas foram a temperatura do ar de fluidização (58 - 92 °C) e a vazão de atomização do ligante (1,0 – 3,6 mL/min) tanto para soluções de goma arábica quanto para soluções de inulina. A concentração da solução também foi uma variável independente e variou de acordo com o tipo de ligante, de 0,7% a 24,9% (m/m) para soluções de goma arábica e de 1,9% a 22,1% (m/m) para soluções de inulina. As respostas avaliadas foram o rendimento do processo e o tamanho médio final das partículas. O monitoramento *in-line* do tamanho das partículas foi realizado por meio de velocimetria de filtro espacial. Com esse monitoramento foi possível acompanhar o crescimento dos grânulos ao longo do tempo e analisar como ele foi influenciado pelas variáveis independentes. O aumento da vazão de ligante e da concentração da solução para soluções de goma arábica influenciaram positivamente a taxa de crescimento e tamanho médio final das partículas. A vazão de ligante apresentou efeito significativo e positivo para o rendimento do processo de aglomeração para os dois tipos de ligante. Isso indica que a rápida inserção de ligante no leite é vantajosa para a aglomeração de goma arábica. O aumento da temperatura prejudicou o crescimento dos grânulos para os dois ligantes utilizados. Foi possível estabelecer as condições ótimas para os dois processos com relativo aumento do tamanho da partícula e rendimentos superiores a 60,0%. As soluções de inulina apresentaram-se como uma opção de ligante que pode associar propriedades prebióticas aos aglomerados, uma vez que ocorreu aglomeração e inulina foi associada ao produto aglomerado. O produto aglomerado apresentou melhores propriedades de instantaneização e fluidez para os dois tipos de ligantes utilizados quando comparado à matéria-prima.

## ABSTRACT

The aim of this work was to study the gum arabic agglomeration process using gum arabic solution and inulin solution as binders to obtain an instant product that associates inulin to gum arabic, and to evaluate the product quality. A rotational central composite experimental design was used to study the agglomeration process. The independent variables studied were the fluidizing air temperature (58 - 92 °C) and the binder flow rate (1.0 - 3.6 mL/min) for both gum arabic solutions and inulin solutions. The binder solution concentration was also an independent variable and varied according to the type of binder from 0.7% to 24.9% (m/m) for solutions of gum arabic and from 1.9% to 22.1% (m/m) for inulin solutions. The evaluated responses were the process yield and the final mean particle size. The particle size in-line monitoring was performed using spatial filter velocimetry. This monitoring was useful to follow the granules growth over time and to analyze how it was influenced by the independent variables. The increase at the binder flow rate and at the solution concentration for gum arabic solutions positively influenced the particle growth and final particle size. The binder flow rate showed a significant and positive effect on the agglomeration process yield for the binders. This indicates that the rapid insertion of binder in the fluidized bed is advantageous for the gum arabic agglomeration. The fluidizing air temperature increase impaired the granules growth for both used binders. It was possible to establish optimal conditions for the two processes with a relative increase of the particle size and yields over 60.0%. In addition, the inulin solutions were presented as a binder solution option which may associate prebiotic properties to the agglomerates, once agglomeration occurred and inulin was incorporated into the agglomerated product. The agglomerated product presented better instantaneous and flow properties for the two types of binders used when compared to the raw material.

## LISTA DE FIGURAS

Figura 2.1: Fenômenos que ocorrem durante a aglomeração.....	32
Figura 2.2: Regimes de contato sólido-fluido. ....	34
Figura 2.3: Queda de pressão no leito ( $\Delta P$ ) em função da velocidade superficial do fluido ( $u_0$ ). .....	35
Figura 2.4: Comportamento de $\Delta P$ em função de $u_0$ para um leito de partículas com ampla distribuição de tamanho de partícula. ....	37
Figura 2.5: Classificação de partículas de acordo com o seu comportamento de fluidização em gás.....	37
Figura 2.6: Regimes fluidodinâmicos em leito cônico segundo Sau et al. (2007) e Zhao et al. (2014). ....	39
Figura 2.7: Queda de pressão no leito ( $\Delta P$ ) em função da velocidade superficial do fluido....	40
Figura 2.8: A) Exsudado no caule da acácia; B) Grãos de goma arábica.....	49
Figura 2.9: Estrutura química da inulina. ....	54
Figura 3.1: Esquema do sistema experimental. ....	59
Figura 3.2: Esquema do princípio de medição da sonda Parsum IPP 70-S por velocimetria de filtro espacial. ....	62
Figura 3.3: (A) Fotografia da sonda Parsum IPP70-S; (B) Dispensor D23. ....	63
Figura 3.4: Calibração do analisador de umidade para goma arábica em pó. ....	65
Figura 3.5: Esquema do dispositivo para determinação do tempo de instantaneização.....	66
Figura 3.6: Distribuição vertical de camadas de uma emulsão de óleo em água que é instável para flotação: (I) sistema inicial (uma camada) ;(II) intermediário (três camadas), (III) sistema final (duas camadas). ....	68
Figura 4.1: Curvas das distribuições de frequência e cumulativa (base volumétrica) obtidas por difração a laser para a matéria-prima. ....	77
Figura 4.2: Viscosidade aparente em função da taxa de deformação para as soluções de goma arábica à temperatura de 25°C. ....	80
Figura 4.3: Viscosidade aparente em função da taxa de deformação para as soluções de inulina à temperatura de 25°C.....	82
Figura 4.4: Curva fluidodinâmica para 0,40 kg de goma arábica em pó.....	83

Figura 4.5: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 5000 após 15 minutos de processo (P1). .....	90
Figura 4.6: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 5000 após 30 minutos de processo (P2). .....	91
Figura 4.7: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 5000 ao final do processo (P3). .....	91
Figura 4.8: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e umidade do material para o ponto central (2,3 mL/min, 75 °C), para aglomeração de goma arábica com água. ....	94
Figura 4.9: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis $Q_{lig}$ (1) e $T_{ar}$ (2) no $D_{50v}$ para o processo de aglomeração de goma arábica com água. ....	95
Figura 4.10: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ durante aglomeração de goma arábica em pó utilizando água como ligante para os ensaios (a) ensaios 1 e 2 e (b) ensaios 7 e 8. ....	97
Figura 4.11: Superfície de resposta para o $D_{50v}$ em função da $Q_{lig}$ e $T_{ar}$ para aglomeração de goma arábica utilizando água como ligante. ....	98
Figura 4.12: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ durante aglomeração de goma arábica em pó utilizando água como ligante para (a) ensaios 2 e 4 e (b) ensaios 5 e 6. ....	99
Figura 4.13: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis $Q_{lig}$ (1) e $T_{ar}$ (2) no rendimento do processo de aglomeração de goma arábica em pó utilizando água como ligante. ....	101
Figura 4.14: Rendimento e fração de torrões para os ensaios de aglomeração utilizando água como ligante. ....	101
Figura 4.15: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas pela sonda Parsum antes do início da aglomeração com água (a) e após inserção de metade do ligante para o ensaio 1 (b) e para o ensaio 3 (c). ....	103
Figura 4.16: Superfície de resposta para $\eta$ em função da $Q_{lig}$ e $T_{ar}$ para aglomeração de goma arábica utilizando água como ligante. ....	103
Figura 4.17: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica (a) e para produto aglomerado com água obtido no ensaio 3 (b). ....	104
Figura 4.18: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade do material para o ponto central (2,3 mL/min, 75 °C, 12,8% (m/m)), para aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma. ....	108

Figura 4.19: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis $Q_{lig}$ (1), $T_{ar}$ (2) e $C_{lig}$ (3) no $D_{50v}$ final para o processo de aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma.....	109
Figura 4.20: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios (a) 5 e 6 e (b) 13 e 14.....	111
Figura 4.21: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $C_{lig}$ (a) ensaio 13 (2,3 mL/min, 75°C e 0,7% (m/m)) e (b) ensaio 14 (2,3 mL/min, 75°C e 24,9% (m/m)). .....	113
Figura 4.22: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios (a) Ensaio 1 e Ensaio 2 e (b) Ensaio 3 e Ensaio 4.....	114
Figura 4.23: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $C_{lig}$ (a) ensaio 1 (1,5 mL/min, 65°C e 5,6% (m/m)) e (b) ensaio 2 (1,5 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)). .....	115
Figura 4.24: Superfícies de resposta para $D_{50v}$ em função da $C_{lig}$ e $Q_{lig}$ (a) e da $C_{lig}$ e $T_{ar}$ (b). A variável não apresentada na superfície de resposta foi mantida no nível 0.....	116
Figura 4.25: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaio 3 e 7 (a) e para os ensaios 9 e 10 (b).....	117
Figura 4.26: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $Q_{lig}$ (a) ensaio 9 (1,0 mL/min, 75°C e 12,8% (m/m)) e (b) ensaio 10 (3,6 mL/min, 75°C e 12,8% (m/m)). .....	118
Figura 4.27: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios 2 e 6 (a) e ensaios 4 e 8 (b).....	119
Figura 4.28: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $Q_{lig}$ (a) ensaio 2 (1,5 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)) e (b) ensaio 6 (3,0 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)). .....	120
Figura 4.29: Superfície de resposta para $D_{50v}$ em função da $T_{ar}$ e $Q_{lig}$ . A $C_{lig}$ foi mantida no nível central (0).....	121
Figura 4.30: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios (a) 2 e 4, (b) 11 e 12 e (c) 6 e 8. ....	123
Figura 4.31: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $Q_{lig}$ (a) ensaio 6 (3,0 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)) e (b) ensaio 8 (3,0 mL/min, 85°C e 20,0% (m/m)). .....	124

Figura 4.32: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis $Q_{lig}$ (1), $T_{ar}$ (2) e $C_{lig}$ (3) no rendimento do processo de aglomeração de GA com soluções da própria goma. ....	125
Figura 4.33: Rendimento e fração de torrões para os ensaios de aglomeração utilizando solução de goma como ligante.....	126
Figura 4.34: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas (a) antes do início da aglomeração pela sonda Parsum e para um tempo relativo de 20,0% para os ensaios (b) 2 e (c) 6.....	127
Figura 4.35: Superfícies de resposta para o rendimento do processo em função de (a) $C_{lig}$ e $Q_{lig}$ , (b) e $Q_{lig}$ e $T_{ar}$ .....	128
Figura 4.36: Superfícies de resposta para o rendimento do processo em função de $C_{lig}$ e $T_{ar}$ . ....	129
Figura 4.37: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas pela sonda Parsum após 15 minutos de processo para os ensaios (a) 13 e (b) 14. ....	131
Figura 4.38: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica (a) e para a goma arábica aglomerada com soluções da própria goma nas condições do ponto ótimo (b). ....	132
Figura 4.39: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica aglomerada com soluções da própria goma nos ensaios 6, 13 e 14. ....	133
Figura 4.40: Teste de instantaneização para (a) goma arábica não aglomerada, (b) goma arábica aglomerada nas condições ótimas. ....	134
Figura 4.41: Dispersão em água (a) matéria-prima e (b) goma arábica aglomerada com soluções da própria goma nas condições ótimas. ....	134
Figura 4.42: Micrografias da matéria-prima (A, B, C e D) e para a goma arábica aglomerada nas condições ótimas (E,F, G e H). ....	138
Figura 4.43: Emulsões preparadas com goma arábica não aglomerada (A) e aglomerada com solução da própria goma nas condições ótima (B). ....	139
Figura 4.44: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade do material para o ponto central (2,3 mL/min, 75 °C, 12,0% (m/m), durante aglomeração de goma arábica com soluções de inulina. ....	142
Figura 4.45: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis $Q_{lig}$ (1), $T_{ar}$ (2) e $C_{lig}$ (3) no tamanho médio final das partículas para o processo de aglomeração de goma arábica com soluções da inulina. ....	143

Figura 4.46: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó durante aglomeração com soluções de inulina para os ensaios (a) 5 e 7 e (b) 11 e 12.....	144
Figura 4.47: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $T_{ar}$ (a) ensaio 11 (2,3 mL/min, 58 °C e 12,0% (m/m)) e (b) ensaio 12 (2,3 mL/min, 92 °C e 12,0% (m/m)).....	145
Figura 4.48: Superfícies de resposta para $D_{50v}$ , para aglomeração de goma arábica com soluções de inulina, em função da $T_{ar}$ e $Q_{lig}$ (a) e da $T_{ar}$ e $C_{lig}$ (b). A variável não apresentada na superfície de resposta foi mantida no nível 0. ....	146
Figura 4.49: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó durante aglomeração com soluções de inulina para os ensaios 1 e 5 (a) e para os ensaios 9 e 10 (b). ....	147
Figura 4.50: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de $Q_{lig}$ (a) ensaio 9 (1,0 mL/min, 75°C e 12,0% (m/m)) e (b) ensaio 10 (3,6 mL/min, 75°C e 12,0% (m/m)). ....	148
Figura 4.51: Superfícies de resposta para $D_{50v}$ , para aglomeração de goma arábica com soluções de inulina, em função da $Q_{lig}$ e $C_{lig}$ . A variável não apresentada na superfície de resposta foi mantida no nível 0. ....	149
Figura 4.52: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade da goma arábica em pó durante aglomeração com soluções de inulina para os ensaios 1 e 2 (a), para os ensaios 7 e 8 (b) e para os ensaios 13 e 14. ....	150
Figura 4.53: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis $Q_{lig}$ (1), $T_{ar}$ (2) e $C_{lig}$ (3) no rendimento do processo de aglomeração de goma arábica com soluções da inulina. ....	151
Figura 4.54: Rendimento e fração de torrões para os ensaios de aglomeração utilizando solução de inulina como ligante.....	152
Figura 4.55: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas (a) antes do início da aglomeração pela sonda Parsum e para um tempo relativo de 20,0% para os ensaios (b) 9 e (c) 10.....	154
Figura 4.56: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica (a) e para a goma arábica aglomerada com soluções inulina nas condições do ponto ótimo (b). ....	155
Figura 4.57: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica aglomerada com soluções de inulina nos ensaios 12, 8 e 10. ....	156

Figura 4.58: Teste de instantaneização para (a) goma arábica não aglomerada, (b) goma arábica aglomerada com solução de inulina nas condições ótimas.....	157
Figura 4.59: Dispersão em água (a) matéria-prima e (b) goma arábica aglomerada com soluções de inulina nas condições ótimas. ....	157
Figura 4.60: Micrografias da matéria-prima (A, B, C e D) e para a goma arábica aglomerada nas condições ótimas (E, F, G e H). ....	160
Figura 4.61: Emulsões preparadas com goma arábica goma arábica não aglomerada (A) e aglomerada com solução de inulina nas condições ótima (B).....	162
Figura 4.62: Influência do tipo de ligante no $D_{50v}$ .....	163
Figura 4.63: Cinética de crescimento do $D_{50v}$ e evolução da umidade para as condições a) A (ensaio 1) e B (ensaio 2) e b) C (ensaio 7) e D (ensaio8).....	165
Figura 4.64: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica aglomerada nas condições A com diferentes soluções ligantes. ....	165
Figura A.1: Curva de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 500 após 15 minutos de processo (P1). ....	182
Figura A.2: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 500 após 30 minutos de processo (P2). ....	182
Figura A.3: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 500 ao final do processo (P3). ....	183
Figura A.4: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 2500 após 15 minutos de processo (P1). ....	183
Figura A.5: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 2500 após 30 minutos de processo (P2). ....	184
Figura A.6: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 2500 ao final do processo (P3). ....	184
Figura A.7: Curvas de distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 10000 após 15 minutos de processo (P1). ....	185
Figura A.8: Distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 10000 após 30 minutos de processo (P2). ....	185
Figura A.9: Distribuição cumulativas para <i>ring buffer</i> de 10000 ao final do processo (P3)..	186

Figura A.10: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 15000 após 15 minutos de processo (P1). .....	186
Figura A.11: Distribuição cumulativas para ring buffer de 15000 após 30 minutos de processo (P2). .....	187
Figura A.12: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 15000 ao final do processo (P3). .....	187

## LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1: Relação entre o índice de Hausner (HR) e o nível de fluidez.....	45
Tabela 2.2: Relação entre o índice de Carr ( $I_{Carr}$ ) e o nível de fluidez. ....	45
Tabela 3.1: Características físico-químicas da matéria-prima.....	57
Tabela 3.2: Características físico-químicas da Frutafit®. ....	58
Tabela 3.3: Condições testadas para determinação do melhor método a ser utilizado para quantificação de inulina.....	69
Tabela 3.4: Parâmetros mantidos fixos e seus respectivos valores para os ensaios preliminares de aglomeração de goma arábica.....	72
Tabela 3.5: Condições testadas nos ensaios preliminares de aglomeração. ....	72
Tabela 3.6: Parâmetros mantidos fixos e seus respectivos valores no planejamento DCCR 2 <sup>2</sup> utilizando água como ligante.....	73
Tabela 3.7: Parâmetros operacionais e seus níveis para o planejamento DCCR 2 <sup>2</sup> de aglomeração utilizando água como ligante. ....	74
Tabela 3.8: Variáveis operacionais e níveis do DCCR 2 <sup>3</sup> utilizando soluções de goma arábica e de inulina como ligantes.....	75
Tabela 4.1: Características físico-químicas dos agentes ligantes.....	78
Tabela 4.2: Tensão superficial para as soluções de goma arábica e inulina em diferentes concentrações.....	78
Tabela 4.3: Ângulo de contato ( $\theta$ ) entre a superfície de goma arábica e as soluções ligantes. ....	79
Tabela 4.4: Parâmetros do modelo de Herschel-Bulkley e viscosidade aparente em função da concentração de goma arábica.....	81
Tabela 4.5: Parâmetros do modelo de Ostwald de Waele e viscosidade aparente em função da concentração de inulina. ....	82
Tabela 4.6: Tamanhos $D_{10v}$ , $D_{50v}$ e $D_{90v}$ para a matéria-prima determinados por difração a laser a seco e por velocimetria de filtro espacial para diferentes <i>ring buffer</i> .....	86
Tabela 4.7: Tamanho de partícula medido <i>in-line</i> em ensaios de aglomeração utilizando a sonda Parsum em diferentes <i>ring buffer</i> e comparação com o método de difração a laser para diferentes pontos do processo. ....	89
Tabela 4.8: Ensaios experimentais segundo o planejamento DCCR 2 <sup>2</sup> , para aglomeração utilizando água como ligante.....	92

Tabela 4.9: $I_{Carr}$ e nível de fluidez para a matéria-prima e para os produtos obtidos nas condições do planejamento experimental para aglomeração de goma arábica com água.....	105
Tabela 4.10: Planejamento DCCR $2^3$ , $D_{50v}$ , $X_{b.u.}$ e $\eta$ e para aglomeração utilizando soluções de goma arábica.....	107
Tabela 4.11: $I_{Carr}$ e nível de fluidez para a matéria-prima e para os produtos obtidos nas condições do planejamento experimental para aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma.....	136
Tabela 4.12: Planejamento DCCR $2^3$ , $D_{50v}$ , $X_{b.u.}$ e $\eta$ e para aglomeração utilizando soluções de inulina.....	141
Tabela 4.13: $I_{Carr}$ e nível de fluidez para a matéria-prima e para os produtos obtidos nas condições do planejamento experimental para aglomeração de goma arábica com soluções de inulina.....	158
Tabela 4.14: Teor de inulina no produto aglomerado. ....	161

## NOMENCLATURA

### Letras latinas

b	diâmetro da fibra ótica simples	[L]
b.u.	base úmida	-
$d_{pm}$	diâmetro da partícula	[L]
$C_{lig}$	concentração de ligante	[M.L <sup>-3</sup> ]
$D_{10v}$	tamanho da partícula base volume, $Q_3(x_{10,3}) = 0,1$	[L]
$D_{50v}$	tamanho da partícula base volume, $Q_3(x_{50,3}) = 0,5$	[L]
$D_{50vFA}$	tamanho médio ao final da atomização de ligante	[L]
$D_{90v}$	tamanho da partícula base volume, $Q_3(x_{90,3}) = 0,9$	[L]
$f_0$	frequência do sinal detectada pelo fotodetector da sonda Parsum	[T <sup>-1</sup> ]
$F_{tor}$	fração de torrões	[%]
GA	goma arábica	-
IN	inulina	-
$H_c$	altura de creme	[L]
$H_b$	altura do bico de atomização	[L]
$H_{est}$	altura do leito estático	[L]
$H_E$	altura da emulsão	[L]
$H_T$	altura total	[L]
HR	índice de Hausner	-
IC	índice de formação de creme	[%]
$I_{Carr}$	índice de Carr	-
INS	<i>International Numbering System</i>	-
k	índice de consistência	
$m_{arraste}$	massa de material arrastado	[M]
$m_i$	massa inicial	[M]
$m_{inc}$	massa de material incrustado	[M]
$m_f$	massa final	[M]
$m_{torrões}$	massa de torrões	[M]
n	índice de comportamento	
$P_{atz}$	pressão relativa de atomização	[M L <sup>-1</sup> t <sup>-2</sup> ]

Q	vazão	$[L^3.t^{-1}]$
$Q_{lig}$	vazão de ligante	$[L^3.t^{-1}]$
$R^2$	coeficiente de determinação	[%]
s	distância entre dois fotodetectores	[L]
t	tempo	[t]
$T_{am}$	temperatura do amostrador	[T]
$T_{ar}$	temperatura do ar de fluidização	[T]
$T_{col}$	temperatura da coluna	[T]
$T_{det}$	temperatura do detector	[T]
$u_{mf}$	velocidade de mínima fluidização	$[L.t^{-1}]$
$u_{mf\partial}$	velocidade de mínima fluidização parcial	
$u_{mf\text{total}}$	velocidade de mínima fluidização total	
$u_0$	velocidade superficial	$[L.t^{-1}]$
v	velocidade da partícula	$[L.t^{-1}]$
$V_{in}$	volume de injeção	$[L^3]$
x	comprimento de corda da partícula	[L]
X	umidade	%

### Letras gregas

$\Delta P$	queda de pressão no leito	$[M L^{-1} t^{-2}]$
$\varepsilon$	porosidade	-
$\gamma_{LV}$	tensão interfacial entre o líquido e o ar	$[M.L^{-1}.T^2]$
$\eta$	rendimento do processo	%
$\theta$	ângulo de contato entre a solução e o sólido	[°]
$\rho_b$	densidade do leito	$[ML^{-3}]$
$\rho_g$	densidade do gás	$[ML^{-3}]$
$\rho_s$	densidade do sólido	$[ML^{-3}]$
$\rho_t$	densidade do leito compactado	$[ML^{-3}]$
$\sigma$	tensão de cisalhamento	$[M.L^{-1}.T^2]$
$\sigma_0$	tensão residual	$[M.L^{-1}.T^2]$
$\sigma_T$	força de adesão entre as partículas	$[M.L^{-1}.T^2]$
$\phi$	fator de forma	-
$\chi$	porosidade do grânulo	-

## Abreviaturas

AG	arabinogalactana
AGP	arabinogalactana e proteína
ANOVA	análise de variância
ANVISA	Agência Nacional de Vigilância Sanitária
CD	critério de desconexão
DCCR	Delineamento composto central rotacional
FAO	<i>Food and Agriculture Organization of the United Nations</i>
FBRM	<i>Focused Beam Reflectance Measurements</i>
IDA	ingestão diária aceitável
JECFA	<i>Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives</i>
LRAC	Laboratório de Caracterização de Biomassa, Recursos Analíticos e de Calibração
LPTF	Laboratório de processos termofluidodinâmicos
MEV	Microscopia eletrônica de varredura
MS	<i>Mastersizer</i>
NIR	<i>Near Infrared</i>
OMS	Organização Mundial da Saúde
RB	<i>Ring buffer</i>
SFV	<i>Spatial filter velocimetry</i>
VFE	velocimetria de filtro espacial
WHO	<i>World Health Organization</i>

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>Introdução e objetivos.....</b>	<b>26</b>
1.1	Introdução .....	26
1.2	Objetivos .....	29
1.2.1	Objetivo geral.....	29
1.2.2	Objetivos específicos .....	29
<b>2</b>	<b>Revisão Bibliográfica .....</b>	<b>31</b>
2.1	Aglomerção de partículas.....	31
2.2	Comportamento fluidodinâmico em leitos fluidizados.....	33
2.3	Aglomerção de partículas em leito fluidizado.....	40
2.4	Propriedades físico-químicas das partículas aglomeradas .....	43
2.4.1	Tamanho de partícula.....	43
2.4.2	Fluidez.....	44
2.4.3	Instantaneização .....	45
2.5	Monitoramento em tempo real do tamanho das partículas .....	46
2.6	Goma arábica .....	48
2.7	Propriedades dos agentes ligantes.....	51
2.7.1	Inulina .....	54
<b>3</b>	<b>Material e métodos .....</b>	<b>57</b>
3.1	Material .....	57
3.1.1	Matéria-prima.....	57
3.1.2	Ligantes .....	57
3.2	Sistema experimental .....	58
3.2.1	Leito fluidizado .....	58
3.2.2	Sistema de monitoramento <i>in-line</i> do tamanho das partículas.....	61
3.3	Caracterização físico-química dos sólidos particulados .....	63
3.3.1	Tamanho de partícula.....	63
3.3.2	Densidade absoluta.....	64
3.3.3	Determinação da umidade.....	64
3.3.4	Propriedade de Fluidez.....	65
3.3.5	Tempo de instantaneização e capacidade de dispersão.....	66

3.3.6	Determinação da estabilidade da emulsão formada .....	67
3.3.7	Quantificação de inulina .....	68
3.4	Preparo e Caracterização dos agentes ligantes .....	69
3.4.1	Sólidos totais .....	69
3.4.2	Massa específica.....	69
3.4.3	Tensão superficial .....	69
3.4.4	Ângulo de contato .....	70
3.4.5	Reologia .....	70
3.5	Estudo fluidodinâmico .....	70
3.6	Ensaio preliminares .....	71
3.7	Ensaio de Aglomeração com água como ligante.....	73
3.8	Ensaio de Aglomeração com soluções de goma arábica e de inulina .....	74
3.9	Rendimento do processo .....	75
<b>4</b>	<b>Resultados e discussões .....</b>	<b>76</b>
4.1	Caracterização físico-química da matéria-prima .....	76
4.2	Caracterização dos agentes ligantes .....	77
4.3	Comportamento fluidodinâmico .....	83
4.4	Ensaio preliminares .....	85
4.5	Análise das medidas tomadas pela sonda parsum.....	85
4.5.1	Comparação entre o método <i>off-line</i> e o método <i>in-line</i> de determinação de tamanho via seca .....	85
4.5.2	Comparação entre o método <i>off-line</i> e o método <i>in-line</i> de determinação de tamanho durante o processo de aglomeração .....	87
4.6	Aglomeração utilizando água como ligante.....	91
4.6.1	Tamanho final da partícula e cinética de crescimento do grânulo .....	94
4.6.1.1	Efeito da temperatura do ar de fluidização .....	96
4.6.1.2	Efeito da vazão de ligante.....	98
4.6.2	Rendimento do processo .....	100
4.6.2.1	Efeito da vazão de ligante.....	102
4.6.3	Caracterização do produto aglomerado.....	104
4.6.3.1	Distribuição do tamanho das partículas .....	104

4.6.3.2 Propriedades de fluidez.....	105
4.7 Aglomeração utilizando soluções de goma.....	105
4.7.1 Tamanho final da partícula e cinética de crescimento do grânulo.....	108
4.7.1.1 Efeito da concentração da solução ligante.....	110
4.7.1.2 Efeito da vazão de ligante.....	116
4.7.1.3 Efeito da temperatura do ar de fluidização.....	121
4.7.2 Rendimento do processo.....	124
4.7.2.1 Efeito da vazão de ligante.....	126
4.7.2.2 Efeito da temperatura do ar de fluidização.....	128
4.7.2.3 Efeito da concentração da solução ligante.....	130
4.7.3 Otimização da aglomeração utilizando solução de goma arábica como ligante.....	131
4.7.4 Caracterização do produto aglomerado.....	132
4.7.4.1 Distribuição de tamanho das partículas.....	132
4.7.4.2 Tempo de instantaneização e capacidade de dispersão.....	133
4.7.4.3 Propriedades de fluidez.....	135
4.7.4.4 Microscopia eletrônica de varredura.....	136
4.7.4.5 Estabilidade da emulsão.....	138
4.8 Aglomeração com soluções de inulina.....	139
4.8.1 Tamanho final da partícula e cinética de crescimento do grânulo.....	142
4.8.1.1 Efeito da temperatura do ar de fluidização.....	144
4.8.1.2 Efeito da vazão de ligante.....	146
4.8.1.3 Efeito da concentração da solução.....	149
4.8.2 Rendimento do processo.....	150
4.8.2.1 Efeito da vazão de ligante.....	153
4.8.3 Otimização da aglomeração utilizando solução de inulina como ligante.....	154
4.8.4 Caracterização do produto aglomerado.....	155
4.8.4.1 Distribuição de tamanho das partículas.....	155
4.8.4.2 Tempo de instantaneização e capacidade de dispersão.....	156
4.8.4.3 Propriedades de fluidez.....	157
4.8.4.4 Microscopia eletrônica de varredura.....	158
4.8.4.5 Quantificação de inulina no produto aglomerado.....	160

4.8.4.6 Estabilidade da emulsão .....	162
4.9 Comparação entre o processo de aglomeração com soluções de goma arábica e soluções de inulina .....	162
4.9.1 Influência do tipo de ligante no $D_{50v}$ final e na distribuição do tamanho de partícula .	163
4.9.2 Influência do tipo de ligante nas propriedades do produto aglomerado .....	165
<b>5 Conclusões.....</b>	<b>167</b>
<b>6 Sugestões para trabalhos futuros.....</b>	<b>169</b>
<b>7 Referências bibliográficas.....</b>	<b>170</b>
APÊNDICE A Comparação entre as curvas de distribuição de tamanho cumulativas obtidas por difração a laser e pela sonda Parsum para diferentes <i>ring buffer</i> .....	182

# 1 INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

## 1.1 INTRODUÇÃO

O estilo de vida na sociedade atual faz com que o consumo de alimentos industrializados seja praticamente inevitável sendo crescente a preocupação com a qualidade desses alimentos. A produção de alimentos com os atributos de sabor, cor, textura e estabilidade desejados depende da utilização de aditivos alimentares que podem ter variadas funções tais como: aromatizantes, acidulantes, corantes, espessantes e estabilizantes. No entanto, além da preocupação com o aspecto dos alimentos, existe também a preocupação com o impacto que eles podem ter sobre a saúde humana. À vista disso, é desejável que os alimentos apresentem o mínimo de aditivos sintéticos ou quimicamente modificados.

É neste contexto que a utilização de gomas de origem vegetal e sem modificações químicas tem tomado destaque na indústria de alimentos. Dentre essas gomas, a mais antiga e mais conhecida é a goma arábica (ou goma acácia) (Islam et al., 1997). A goma arábica é um exsudado natural, composto por polissacarídeos e glicoproteínas, obtido a partir de caules e ramos da acácia. A FAO/OMS por intermédio do Comitê Conjunto de Peritos em Aditivos Alimentares (JECFA) reconhece como um aditivo alimentar seguro o exsudado de duas espécies: *Acacia senegal* e *Acacia seyal* (FAO, 1999).

Uma das principais funções da goma arábica como aditivo é a de emulsificante, sendo considerada muito eficiente e um bom estabilizante de longo prazo em alimentos e cosméticos que contêm emulsões do tipo óleo-água (Dror et al., 2006). Além da função de emulsificante, a goma arábica encaixa-se na definição de fibra dietética adotada pelo *Codex Alimentarius*, bem como pode substituir a sacarose em formulações, pois provoca, na boca, sensação equivalente. Desta maneira, a goma arábica pode ser empregada com segurança para melhorar a qualidade nutricional, aumentando o teor de fibras e/ou reduzindo o teor de açúcar, sem prejudicar as propriedades sensoriais dos alimentos. A goma arábica já foi utilizada com sucesso na produção de bebidas com baixo teor de açúcar e na substituição total ou parcial de sacarose, xarope de glicose ou xarope de milho, rico em frutose, no agente ligante de barras de cereal devido a sua boa capacidade de ligar os componentes secos da fórmula (Baray, 2009).

Além de possuir os atributos citados acima, a goma arábica é um aditivo completamente natural, pois não passa por nenhuma transformação química desde a sua

colheita até a utilização na indústria. O processamento da goma envolve apenas processos físicos como moagem, classificação, filtração, pasteurização e secagem em *spray dryer*. O produto obtido ao final da secagem em *spray dryer* pode ser utilizado sem que seja necessário qualquer purificação física ou microbiológica ou processamento químico (Idris e Haddad, 2012). Entretanto, os pós obtidos por secagem em *spray dryer* normalmente são formados por partículas muito pequenas, com tamanho entre 10 e 100  $\mu\text{m}$ , oferecendo dificuldades no manuseio e reconstituição (Fuchs et al., 2006). Assim sendo, a goma arábica proveniente da secagem em *spray dryer*, apesar de já estar pronta para ser utilizada, pode ter suas propriedades de manuseio e dispersão melhoradas através do processo de aglomeração (Idris e Haddad, 2012). Assim, quando utilizada em uma versão aglomerada, a etapa de dissolução poderá ser facilitada diminuindo o gasto de energia e tempo com agitação e mistura.

A aglomeração ou granulação é uma espécie de *design* de partículas (Iveson et al., 2001). Nesse processo, ocorre o aumento do tamanho das partículas gerando grânulos que são agregados de partículas finas. Contudo, os aglomerados não são simplesmente agregados aleatórios de materiais em pó e sim estruturas granulares com formas e tamanhos particulares de modo a executar funções específicas (Tardos e Mort, 2003 e Mort, 2005).

A aglomeração em leito fluidizado é utilizada em diversas indústrias, dentre elas as indústrias de alimentos, de corantes, de agrotóxicos e as farmacêuticas. Nesse equipamento, as partículas são suspensas em um fluxo de ar quente e a solução ligante é pulverizada sobre elas. O ar fornecido para proporcionar a fluidização também provoca a evaporação ligante (Tardos et al., 1997 e Hemati et al., 2003). Esse processo é complexo pois a formação do aglomerado depende do ligante utilizado, das características físico-químicas das partículas primárias e dos parâmetros do processo. Além disso, a modificação do tamanho, da forma e da umidade das partículas está associada a mudanças nas características de fluidização (Tardos et al., 1997).

A utilidade e a complexidade da aglomeração em leito fluidizado tornam o monitoramento em tempo real do tamanho das partículas um artifício importante para compreensão do processo, assim como para a manutenção de condições estáveis de fluidização. Diferentes estratégias de monitoramento em tempo real, *on-line* e *in-line*, tem sido utilizadas com sucesso e contribuído para aprimoramento do processo de aglomeração em leito fluidizado e, conseqüentemente, para a qualidade do produto final (Lipsanen et al., 2008; Burggraef et al., 2010; Dieter et al., 2011 e Silva e Taranto, 2015). Esse monitoramento atualmente é

empregado, com maior frequência, na aglomeração de materiais inertes e ainda pouco explorado na aglomeração de pós alimentícios.

A inulina é um carboidrato de reserva em plantas, resistente à digestão no intestino delgado humano, sendo, portanto, uma fibra dietética (Apolinario et al., 2014). Além de aumentar o teor de fibras em alimentos, a inulina também confere a eles uma melhoria do sabor e da textura em comparação com outras fibras (Franck, 2002) . Uma outra vantagem da inulina é o seu efeito prebiótico, ou seja, que ela estimula o crescimento de bifidobactérias e de lactobacilos, microrganismos considerados benéficos à saúde humana (Karimi et al., 2015). Em virtude das suas características, a inulina é amplamente utilizada em alimentos processados como substituto de gordura ou açúcar e fornece apenas 25% a 35% de energia em comparação com os carboidratos digestíveis (Shoaib et al., 2016).

Recentemente, alguns estudos têm abordado o efeito complementar entre a goma arábica e a inulina. A associação entre goma arábica e inulina pode mudar o perfil de fermentação das fibras no cólon tornando-a mais lenta, o que pode possibilitar aumento do conteúdo de fibras na alimentação, sem a observação de eventos de intolerância (Marzorati et al., 2015). Além disto, a goma arábica e a inulina podem ter efeito complementar na modulação da composição e da atividade da microbiota intestinal resultando em uma resposta anti-inflamatória específica da região do cólon (Daguet et al., 2016).

Diante do exposto, é interessante o estudo do processo de aglomeração da goma arábica em leite fluidizado para melhorar suas características de manuseio e de reconstituição, principalmente em água, para sua incorporação em diferentes alimentos. O monitoramento em tempo real do tamanho das partículas é importante para a compreensão da cinética de aglomeração de goma arábica e da influência dos parâmetros de processo na qualidade do produto.

O presente trabalho visa realizar a aglomeração de goma arábica utilizando soluções da própria goma arábica e de inulina como ligantes. A utilização da goma arábica como agente ligante objetiva obter um produto aglomerado, com melhor molhabilidade e propriedades de escoamento e manuseio e que possua composição semelhante ao material original. A utilização de inulina tem como objetivo estudar a viabilidade da inulina como ligante e acrescentar valor nutricional e funcional à goma arábica em pó. A comparação de desempenho de soluções ligantes de goma arábica e de outros polissacarídeos no processo de aglomeração em leite

fluidizado é pouco reportada na literatura. Portanto, é interessante avaliar a influência das características da solução sobre o processo e sobre as propriedades do produto aglomerado, para que os mecanismos de aglomeração sejam bem entendidos e possam ser controlados.

## **1.2 OBJETIVOS**

### **1.2.1 Objetivo geral**

Estudar o processo de aglomeração de goma arábica em leito fluidizado com monitoramento em tempo real do tamanho das partículas, a fim de compreender a influência de diferentes parâmetros de processo na cinética de aglomeração e nas características do produto, assim como incorporar inulina, por meio da solução ligante, à goma arábica em pó.

### **1.2.2 Objetivos específicos**

- Determinar as condições de fluidização para a goma arábica não aglomerada com o propósito de determinar a velocidade de processo.
- Determinar as condições do processo para concentração e vazão do agente ligante, velocidade e temperatura do ar de fluidização em que serão feitos os ensaios de aglomeração da goma arábica.
- Analisar a cinética de aglomeração da goma arábica em leito fluidizado com monitoramento em tempo real do tamanho das partículas, utilizando água e soluções aquosas da própria goma e soluções de inulina em diferentes concentrações, como agente ligante.
- Avaliar a influência dos parâmetros operacionais na aglomeração da goma arábica em leito fluidizado, tendo soluções da própria goma e soluções de inulina analisando o rendimento do processo, o diâmetro médio de partículas e a umidade final.
- Definir as condições ótimas de aglomeração de goma arábica tendo como ligantes soluções de goma arábica e soluções de inulina.
- Caracterizar as soluções ligantes (soluções aquosas de goma arábica e soluções de inulina) quanto à densidade, reologia, ângulo de contato e tensão superficial.

- Analisar a influência das características físico-químicas das soluções ligantes (soluções aquosas de goma arábica e soluções de inulina) no crescimento dos grânulos.
- Caracterizar o produto aglomerado obtido, em condições ótimas de processo e em algumas condições escolhidas, por meio de análises de umidade, tempo de instantaneização, tamanho médio e distribuição do tamanho de partícula, fluidez e estabilidade da emulsão e comparar essas características com aquelas apresentadas pela matéria-prima.

## 2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Neste capítulo, será apresentada uma revisão bibliográfica dos temas pertinentes ao desenvolvimento desta tese. Serão apresentados conceitos sobre aglomeração de partículas, aglomeração em leitos móveis, com destaque para os leitos fluidizados e monitoramento em tempo real do tamanho da partícula. As principais características do aglomerado também são apresentadas, assim como os materiais utilizados como matéria-prima e ligantes: goma arábica e inulina.

### 2.1 AGLOMERAÇÃO DE PARTÍCULAS

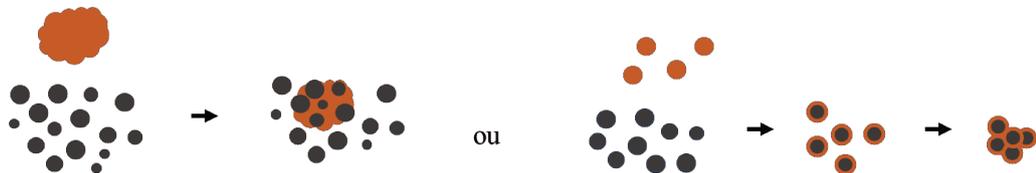
A aglomeração é a formação de grânulos, partículas maiores, a partir de partículas sólidas menores. A união dessas partículas se deve à ação de forças físicas de curto alcance entre elas e/ou por meio da utilização de ligantes. Esse processo, além de aumentar o tamanho, modifica a forma, a densidade, a porosidade e melhora as propriedades de fluidez das partículas (Tardos et al., 1997 e Pietsch, 2002). A aglomeração agrega valor ao produto, por exemplo, produzindo partículas livres de poeira e partículas que são otimizadas para usos como compactação e dispersão/dissolução (Mort, 2005).

A aglomeração por via úmida é frequentemente utilizada na obtenção de diferentes produtos tais como detergentes, alimentos, produtos químicos, agrícolas e farmacêuticos. Nesse processo ocorre a adição de um ligante líquido, solução ou material fundido, geralmente por aspersão, sobre partículas sob agitação (Tardos et al., 1997 e Iveson et al., 2001). O ligante faz com que as partículas se unam por meio de uma combinação de forças capilares e forças viscosas até que ligações mais estáveis sejam formadas pela subsequente secagem ou sinterização desse ligante (Iveson et al., 2001).

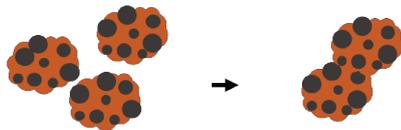
Iveson et al. (2001) descreveram o processo de aglomeração como sendo decorrente de três fenômenos mostrados na Figura 2.1: umidificação e nucleação, coalescência e consolidação e atrito e quebra. Umidificação e nucleação ocorrem quando o ligante entra em contato com o pó seco e se distribui através deste, iniciando a formação dos grânulos. A umidificação do material dependerá da interação entre ligante e material e do tamanho das gotas de ligante em relação ao material. Quando a gota for maior que o material particulado, a formação do grânulo ocorrerá por imersão das partículas na gota, mas se as gotas forem relativamente pequenas, ocorrerá a distribuição delas sobre a superfície das partículas que se

unirão. As partículas umedecidas, núcleos, ao colidirem entre si, se unirão formando partículas maiores, fenômeno chamado de coalescência. Com a secagem dessas partículas ocorrerá a formação de pontes sólidas e consolidação da estrutura aglomerada. A coalescência e a consolidação podem começar assim que o líquido for adicionado, simultaneamente à fase de umidificação e nucleação, e ter continuidade após concluída a adição de líquido. Atrito e quebra podem ocorrer com os grânulos ainda úmidos ou com grânulos secos no próprio equipamento ou na manipulação posterior. A quebra de grânulos úmidos pode ser utilizada para limitar o tamanho máximo do grânulo ou para ajudar a distribuição do ligante. Por outro lado, a quebra dos grânulos secos conduz à geração de finos e por isso deve ser evitada (Tardos et al., 1997; Iveson et al., 2001 e Mort, 2005).

#### D) Umidificação e nucleação



#### II) Coalescência e consolidação



#### III) Atrito e quebra

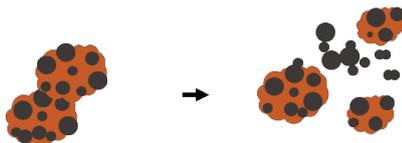


Figura 2.1: Fenômenos que ocorrem durante a aglomeração.

Adaptado de Iveson et al. (2001) e Mort (2005).

Os mecanismos de ligação que ocorrem durante os processos de aglomeração dependem não somente do processo de aglomeração utilizado, mas também das características dos materiais envolvidos (Dopfer et al., 2013). É preciso conhecê-los para que o produto possua as características desejadas.

Segundo Pietsch (2002), esses mecanismos podem ser divididos em cinco grupos, mas é improvável que em um processo de aglomeração atue apenas um mecanismo. Os cinco

grupos são: pontes sólidas, forças de adesão e coesão, tensão superficial e capilaridade, forças de tração entre os sólidos e pontes de encaixe. As pontes sólidas são formadas por sinterização, fusão parcial, reação química, endurecimento do líquido ligante e, durante a secagem, por recristalização e deposição. As forças de adesão e coesão podem ter origem na aplicação de ligantes altamente viscosos ou serem naturais do material finamente particulado pela adsorção de átomos ou moléculas. Um dos mecanismos de ligação mais comuns na aglomeração via úmida é a tensão superficial e a capilaridade quando pontes líquidas se formam entre as partículas. Essas pontes podem surgir a partir da água livre na superfície das partículas ou por condensação capilar e, após a secagem do ligante, dão origem a pontes sólidas. As forças de atração entre os sólidos mais importantes são as forças moleculares (van der Waals, ligações livres e pontes de hidrogênio), forças elétricas e forças magnéticas. Por fim, as pontes de encaixe dependem da forma da partícula sólida. Em partículas fibrosas, por exemplo, as dobras podem se encaixar umas sobre as outras durante a granulação.

A aglomeração via úmida pode ser realizada em diferentes tipos de equipamentos como, por exemplo, misturadores e tambores rotativos, leitos fluidizados e leitos de jorro (Tardos et al., 1997). O processo em cada equipamento apresenta suas características próprias. Uma ampla revisão dos vários tipos de técnicas é apresentada em Pietsch (2002).

O leito fluidizado tem sido utilizado com sucesso em processos de aglomeração de pós alimentícios e fármacos. Ele é um dos mais adequados quando o objetivo é produzir aglomerados com alta porosidade, boa resistência mecânica, boas propriedades de escoamento, que facilitam o manuseio, e boa homogeneidade (Hemati et al., 2003 e Turchiuli et al., 2005).

## **2.2 COMPORTAMENTO FLUIDODINÂMICO EM LEITOS FLUIDIZADOS**

A fluidização de partículas é a operação em que as partículas sólidas comportam-se de maneira semelhante a um fluido por meio da passagem ascendente de um gás ou líquido (Kunii e Levenspiel, 1991). Ela é muito utilizada para processos, tanto físicos quanto químicos, em que é preciso contato entre uma fase fluida e uma fase sólida. Isso se deve a boa mistura que proporciona uma temperatura uniforme em todo o leito, altas taxas de transferência de massa e de calor e fácil manuseio de sólidos (Di Felice, 1995).

O comportamento do sistema sólido-fluido e a movimentação das partículas dependerá da velocidade superficial do fluido ascendente. Diferentes regimes de contato sólido-fluido foram descritos por Kunii e Levenspiel (1991) e são mostrados na Figura 2.2.

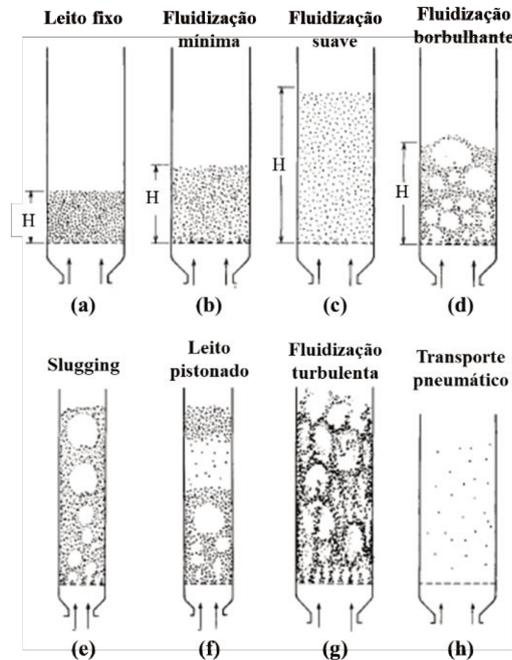


Figura 2.2: Regimes de contato sólido-fluido.

Adaptado de Kunii e Levenspiel (1991).

Inicialmente, quando a velocidade do fluido é baixa, ele percola os espaços vazios entre as partículas que permanecem estáticas em leito fixo (Figura 2.2 (a)). O aumento na velocidade do fluido causa o afastamento e vibração restrita das partículas formando um leito expandido. Com velocidade um pouco mais alta, a força de arraste do fluido equilibra-se com o peso das partículas e a queda de pressão no leito, a partir desse ponto, torna-se constante. Nesse caso, o leito é considerado em fluidização incipiente (Figura 2.2 (b)) e a velocidade do fluido é chamada velocidade de mínima fluidização (Kunii e Levenspiel, 1991 e Smith, 2007).

A partir da fluidização incipiente, sistemas sólido-líquido comportam-se de maneira diferente dos sistemas sólido-gás. No primeiro caso o aumento na velocidade do fluido acima da velocidade de mínima fluidização resulta em uma expansão lenta e progressiva chamada de fluidização suave ou homogênea (Figura 2.2 (c)). Já nos sistemas sólido-gás este aumento na velocidade provoca o surgimento de instabilidades como borbulhamentos e formação de canais.

O leito com esse comportamento é chamado de fluidizado agregativo, leito fluidizado heterogêneo ou leito fluidizado borbulhante (Figura 2.2 (d)) (Kunii e Levenspiel, 1991).

Em sistemas sólido-gás, quando altas velocidades são utilizadas, as bolhas formadas se unem à medida que sobem o leito. Quando o leito é formado por partículas finas, elas escoam entre as bolhas e as paredes do leito num regime chamado *slugging* (Figura 2.2 (e)). Quando o leito é formado por partículas grossas, a porção de material acima da bolha é empurrada para cima, como por um pistão, ou seja, ocorre a formação de um fluxo pistonado (Figura 2.2 (f)) (Kunii e Levenspiel, 1991).

Uma última fase de fluidização de partículas finas ocorrerá quando velocidades do gás ainda mais altas forem usadas de modo que a velocidade terminal dos sólidos é excedida. Nesse caso, a superfície superior do leito desaparece, o arrastamento torna-se apreciável e é observado um movimento turbulento de aglomerados sólidos e vazios de gás de vários tamanhos e formas (Figura 2.2 (g)). Com um aumento adicional na velocidade do gás, os sólidos são arrastados para fora do leito (Figura 2.2 (h)) (Kunii e Levenspiel, 1991).

A construção da curva fluidodinâmica, que apresenta a queda de pressão no leito em função da velocidade superficial do fluido, é necessária para determinação do comportamento do sistema sólido-fluido. Além disso, é importante para determinação da faixa de velocidade de trabalho em processos que envolvem a fluidização de partículas. A Figura 2.3 apresenta uma curva fluidodinâmica típica para partículas não muito pequenas ( $d_p \sim 160 \mu\text{m}$ ) e com distribuição de tamanho uniforme.

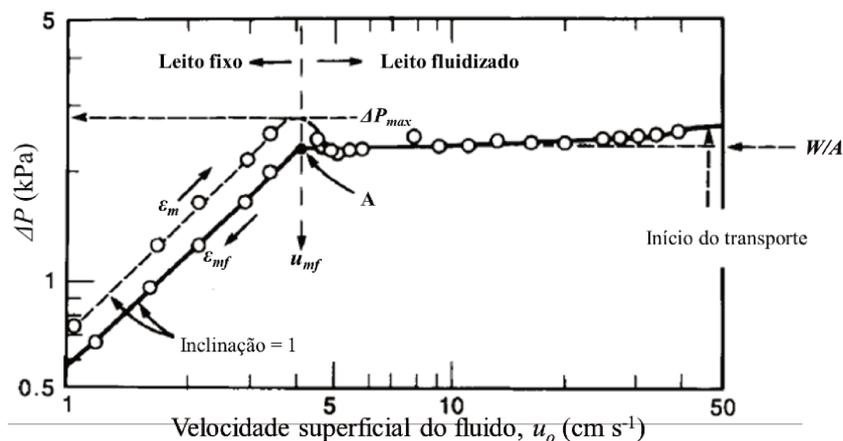


Figura 2.3: Queda de pressão no leito ( $\Delta P$ ) em função da velocidade superficial do fluido ( $u_0$ ).

Fonte: Kunii e Levenspiel (1991).

No regime de leito fixo a queda de pressão no leito aumenta linearmente com o aumento da velocidade superficial do fluido até atingir um valor máximo ( $\Delta P_{\max}$ ). Com o aumento adicional da velocidade, a porosidade ( $\varepsilon$ ) do leito aumenta e a queda de pressão no leito diminui. Nesse ponto, há o equilíbrio de forças no leito, ou seja, a força peso do leito de partículas se iguala à força de arraste do gás e o leito apresenta fluidização incipiente. Nesse caso, a velocidade é chamada velocidade de mínima fluidização ( $u_{mf}$ ). A partir de então, com o aumento da velocidade o leito se expande, o regime de fluidização é estabelecido e, mesmo que a velocidade do fluido continue aumentando, a  $\Delta P$  permanece praticamente constante. No entanto, caso seja aplicada uma velocidade mais alta terá início ao transporte de partículas para fora do leito (Kunii e Levenspiel, 1991).

O comportamento e, conseqüentemente, a curva fluidodinâmica de partículas com ampla distribuição de tamanho não apresenta o pico de  $\Delta P_{\max}$  apresentado na Figura 2.3. Durante a fluidização dessas partículas, quando a velocidade superficial é aumentada, ocorre fluidização parcial, ou seja, as partículas menores movem-se para os espaços vazios entre as partículas maiores e fluidizam, enquanto as partículas maiores permanecem estacionárias. Para a fluidização parcial e  $\Delta P$  apresentada é intermediária. Com o aumento progressivo da velocidade superficial do gás, a partir de certo ponto, a força de arraste do gás se iguala à força peso do leito de partículas e a  $\Delta P$  permanece constante. A velocidade de mínima fluidização é definida por convenção pela intersecção entre a linha extrapolada da queda de pressão no leito fixo e a linha extrapolada da queda de pressão em regime de leito fluidizado, Figura 2.4, (Kunii e Levenspiel, 1991).

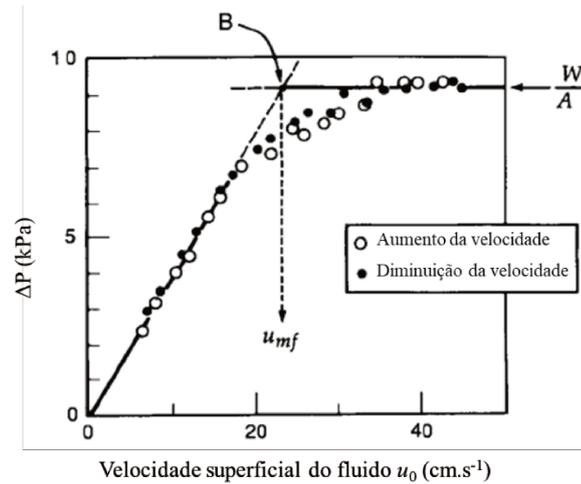


Figura 2.4: Comportamento de  $\Delta P$  em função de  $u_0$  para um leito de partículas com ampla distribuição de tamanho de partícula.

Fonte: Kunii e Levenspiel (1991).

Além da velocidade superficial do fluido, o tamanho e a densidade das partículas influenciam o comportamento do sistema sólido-fluido. Geldart (1973) descreveu quatro diferentes grupos de comportamento, notadamente diferentes entre si, de acordo com o diâmetro médio de partícula ( $d_{pm}$ ) e densidade do sólido ( $\rho_s$ ) e do gás ( $\rho_g$ ). Esses grupos são apresentados na Figura 2.5 e brevemente descritos a seguir.

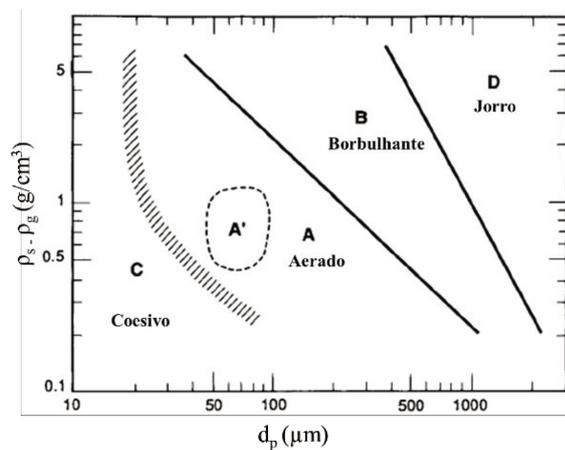


Figura 2.5: Classificação de partículas de acordo com o seu comportamento de fluidização em gás.

Fonte: Kunii e Levenspiel (1991).

O grupo A é formado por partículas com tamanho médio pequeno e/ou baixa densidade ( $\rho_s < 1,4 \text{ g/cm}^3$ ). Os leitos destes materiais expandem consideravelmente antes do início da formação de bolhas, fluidização borbulhante. São sólidos de fácil fluidização, com fluidização suave a baixas velocidades de gás e fluidização borbulhante com pequenas bolhas em maiores velocidades de gás (Geldart, 1973 e Kunii e Levenspiel, 1991).

Uma grande variedade de partículas pertence ao grupo B, formado por partículas com  $40 \mu\text{m} < d_{pm} < 500 \mu\text{m}$  e  $1,4 \text{ g/cm}^3 < \rho_s < 4 \text{ g/cm}^3$ . Para estes materiais a expansão do leito é pequena e ocorre a formação de bolhas em velocidade igual ou imediatamente acima da  $u_{mf}$  (Geldart, 1973 e Kunii e Levenspiel, 1991).

O grupo C é formado por partículas coesivas que apresentam dificuldade de fluidização, pois as forças interpartículas são maiores que aquelas exercidas pelo gás sobre as partículas. Em leitos com pequenos diâmetros, o material se eleva como um pistão e, em leitos maiores, ocorre a formação de canais preferenciais que começam na placa distribuidora de gás e se estendem até a superfície do leito. A intensidade da mistura e, conseqüentemente, a transferência de calor neste sistema é muito mais pobre que os pós dos grupos A ou B (Geldart, 1973 e Kunii e Levenspiel, 1991).

Partículas grosseiras e muito densas formam o grupo D. Para essas partículas a velocidade de mínima fluidização é alta e a mistura dos sólidos é ruim. Este leito de partículas comporta-se de maneira irregular com formação de grandes bolhas e muitos canais e, se a distribuição do gás for irregular, ocorrerá a formação de jorro (Geldart, 1973 e Kunii e Levenspiel, 1991).

Um caso particular de leito fluidizado são os leitos cônicos. Nesses leitos a velocidade superficial do fluido diminui no sentido ascendente. Esse perfil de velocidade faz com que as partículas apresentem fluidização parcial, ou seja, as partículas na parte inferior do leito são fluidizadas antes que aquelas na parte superior do leito (Peng e Fan, 1997). Peng e Fan (1997) descreveram cinco diferentes regimes de contato sólido-líquido em leitos cônicos: leito fixo, fluidização parcial, fluidização completa, regime de transição e fluidização turbulenta. Sau et al. (2007) e Zhao et al. (2014) apresentaram curvas fluidodinâmicas semelhantes para sistemas gás-sólido e observaram os regimes de leito fixo, leito parcialmente fluidizado e leito completamente fluidizado. Uma representação esquemática do comportamento fluidodinâmico

é mostrada na Figura 2.6 e a curva fluidodinâmica típica para partículas dos grupos B e D de Geldart em leitos cônicos é apresentada na Figura 2.7.

O regime I, leito fixo, ocorre em baixa velocidade superficial do fluido e o comportamento é o mesmo daquele apresentado em leitos fluidizados cilíndricos descrito anteriormente até que a queda de pressão máxima seja atingida. Entre os pontos B e C, Figura 2.7, ocorre o regime II de fluidização parcial. Nestas condições as partículas mais próximas a placa distribuidora de ar são levantadas e é formada uma cavidade com pequeno número de partículas. Essa cavidade é instável e é desfeita com um leve aumento na velocidade superficial do fluido formando uma região fluidizada (Peng e Fan, 1997). No ponto B, onde tem início este comportamento é determinada a velocidade de mínima fluidização parcial,  $u_{mfp}$ . A porosidade do leito neste regime diminui com a sua altura e as partículas nas camadas superiores do leito permanecem estáticas (Kaewklum e Kuprianov, 2008). A queda de pressão durante esse regime diminui com o aumento da velocidade superficial do gás (Sau et al., 2007). A partir do ponto C, tem início o regime III, regime completamente fluidizado, quando a região fluidizada atinge a superfície do leito, nesse ponto a velocidade é chamada velocidade de mínima fluidização total,  $u_{mft}$ . Peng e Fan (1997) consideram comportamento semelhante ao apresentado na Figura 2.6 (III) como completamente fluidizado. Entretanto, Toyohara e Kawamura (1991, *apud* (Schaafsma et al., 2006) consideram que o leito só estará completamente fluidizado quando a região mais porosa se expandir radialmente por todo leito.

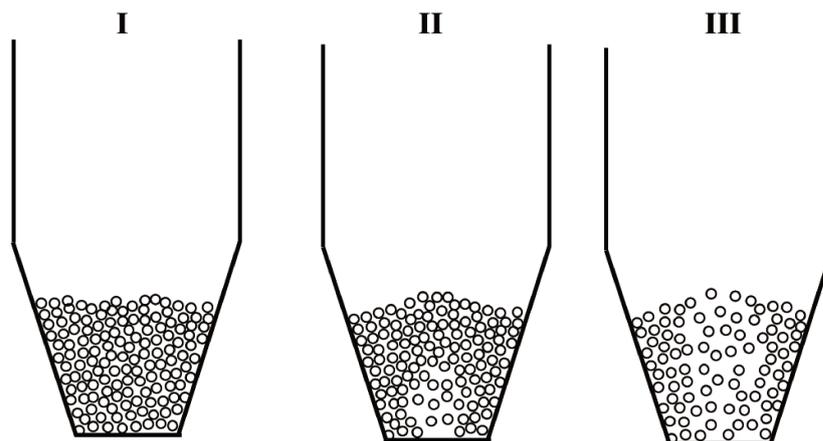


Figura 2.6: Regimes fluidodinâmicos em leito cônico segundo Sau et al. (2007) e Zhao et al. (2014).

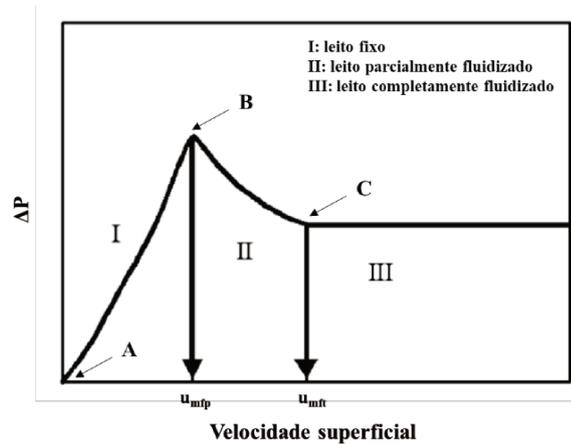


Figura 2.7: Queda de pressão no leito ( $\Delta P$ ) em função da velocidade superficial do fluido. Modificado de Kaewklum e Kuprianov (2008).

### 2.3 AGLOMERAÇÃO DE PARTÍCULAS EM LEITO FLUIDIZADO

Aglomeração em leito fluidizado consiste na formação de grânulos por pulverização de um ligante, que pode ser água, uma solução, suspensão ou fundido sobre um leito fluidizado de partículas. A colisão entre as partículas úmidas proporciona a formação de pontes líquidas entre elas e, conseqüentemente, a coalescência. A subsequente secagem pelo ar quente de fluidização leva a consolidação da nova estrutura formada (Iveson et al., 2001; Hemati et al., 2003 e Turchiuli et al., 2005).

Esse processo é diferente daqueles que ocorrem em outros misturadores dado que o gás fornecido para a fluidização das partículas também é responsável pela evaporação do ligante e aquecimento (ou resfriamento) do material. Além disso, em virtude do aumento das partículas, acontecem mudanças nas características de fluidização, sendo a mais importante a propriedade de mistura do leito. Esta interação entre diferentes fenômenos faz com que a aglomeração em leito fluidizado seja complexa e ao mesmo tempo versátil, pois permite que processos de secagem ou resfriamento ocorram simultaneamente ao aumento do tamanho das partículas. Ademais, a aglomeração em leito fluidizado destaca-se por ser um processo com intensa transferência de calor e massa e com mistura eficiente (Tardos e Mort, 2003 e Turchiuli et al., 2013).

Segundo Hemati et al. (2003), o processo de aglomeração em leito fluidizado é influenciado por etapas elementares que são consecutivas e competitivas: mistura de partículas, atomização de ligante, evaporação parcial do solvente da superfície das partículas, aumento do

tamanho das partículas, abrasão e fragmentação. As características físico-químicas das partículas primárias e do ligante utilizado afetam essas etapas e, conseqüentemente, a formação dos grânulos. A influência dos parâmetros de processo no próprio processo e nas características do produto tem sido estudada por diferentes grupos de pesquisa.

Inicialmente a maioria das pesquisas relativas à aglomeração em leito fluidizado utilizavam inertes ou materiais modelos como matéria-prima. Entretanto, tem aumentado o número de trabalhos que envolvem pós alimentícios, fármacos e químicos de maneira geral. Esses estudos são importantes dada a variação nas propriedades desses materiais e nas características dos ligantes adequados a cada processo. Na análise dos parâmetros do processo que exercem influência sobre a estabilidade do sistema e características do produto aglomerado geralmente são estudados aqueles mais relevantes: velocidade e temperatura do ar de fluidização, vazão de ligante e suas características.

A velocidade e a temperatura do ar de fluidização são parâmetros que devem ser bem determinados na aglomeração em leito fluidizado, considerada controlada quando há equilíbrio entre o umedecimento e a secagem. Esses dois parâmetros, associados à vazão de ligante, exercem influência no mecanismo de crescimento dos grânulos, na estabilidade do sistema e na sua capacidade de secagem (Hemati et al., 2003; Jimenez et al., 2006 e Dacanal, 2009). Durante a aglomeração de acerola em pó, Dacanal e Menegalli (2009) observaram que para valores baixos de temperatura e de velocidade do ar de fluidização, houve aumento excessivo da umidade relativa do ar, o que diminuiu a eficiência de secagem das partículas e aumentou a incrustação do material nas paredes do leito. No entanto, limites máximos de velocidades devem ser estabelecidos para que não ocorra excessiva quebra e arraste de material. O aumento da velocidade de fluidização resultou em maior quantidade de finos, e menor tamanho médio de partículas de lactose (Charinpanitkul et al., 2008). Esses mesmos autores observaram que com o aumento da temperatura houve redução no tamanho da partícula, assim como foi observado para a proteína isolada de arroz (Andreola, 2017) e para a pectina (Hirata et al., 2013).

O parâmetro vazão de ligante apresentou-se como significativo e seu aumento favoreceu o rendimento do processo e tamanho médio das partículas em diferentes estudos (Dacanal e Menegalli, 2010; Hirata et al., 2013; Vengateson e Mohan, 2016 e Andreola, 2017). Entretanto, a modificação das propriedades do aglomerado e a melhoria no rendimento do

processo por meio da alteração na vazão de ligante é limitada, uma vez que esse é um parâmetro chave na estabilidade da fluidização e para o controle do processo, pois influencia a taxa de secagem (Turchiuli et al., 2005). Além disso, quando associadas a menores temperatura e velocidade do ar, maiores vazões de ligante resultam em um produto com maior umidade o que pode comprometer a sua estabilidade durante o armazenamento. Sendo assim, os valores utilizados não devem ser muito altos ao ponto de prejudicar a estabilidade da fluidização, mas devem ser o suficiente para proporcionar efetivo umedecimento da superfície das partículas.

Além da influência dos parâmetros do processo, na aglomeração com adição de solução ligante, as propriedades dos materiais sólidos e dos ligantes são relevantes, assim como as suas interações (Mort, 2005). É importante, então, compreender como as propriedades particulares de cada material podem influenciar o processo de aglomeração e as características do produto aglomerado.

A concentração da solução ligante utilizada pode afetar as características do produto aglomerado. Neste sentido, o efeito da variação da concentração de maltodextrina utilizada como ligante para aglomeração de “leite” de soja em pó foi estudado por Jinapong et al. (2008). Foi observado que o aumento até 10% (m/v) na concentração foi benéfico, mas acima disso prejudicou o tamanho das partículas. Esse resultado foi atribuído a maior friabilidade das partículas quando maior quantidade de ligante é utilizada. Na aglomeração de proteína isolada de soja o mesmo resultado foi observado para valores mais altos de pressão relativa de atomização utilizados (1,0 a 1,5 bar), mas o aumento na concentração de ligante resultou em um efeito positivo no tamanho dos grânulos para menores valores de pressão de atomização. Isso ocorreu devido ao maior tamanho de gota de ligante sob menor pressão de atomização e também ao maior tempo de residência da gota no sistema (Dacanal e Menegalli, 2010).

Assim como a concentração, o tipo de ligante utilizado também pode alterar as características do produto aglomerado. Hirata (2015) observou que soluções de goma arábica e sacarose tem efeitos diferentes no tamanho da partícula no processo de aglomeração de pectina. O aumento na concentração da solução de goma arábica proporcionou aumento da partícula, mas o contrário foi observado para a solução de sacarose. Segundo a autora, isso é decorrente dos diferentes comportamentos reológicos. As soluções de goma arábica apresentaram tensão residual e comportamento pseudoplástico para baixas taxas de deformação e comportamento newtoniano frente a altas taxas de deformação. As soluções de sacarose apresentaram

comportamento newtoniano para toda a faixa de taxa de deformação estudada (Hirata, 2015). O tipo de ligante também influenciou a aglomeração de proteína de ervilha, uma vez que a aglomeração com solução de goma arábica resultou em grânulos maiores quando comparada com aglomeração com água (Nascimento, 2017).

## **2.4 PROPRIEDADES FÍSICO-QUÍMICAS DAS PARTÍCULAS AGLOMERADAS**

### **2.4.1 Tamanho de partícula**

O tamanho de partícula é essencial e é a propriedade física mais importante para a determinação das características do produto em pó. Outras propriedades como a densidade do leito de partículas, compressibilidade e fluidez do material, sobretudo em alimentos, são altamente dependentes do tamanho das partículas e da sua distribuição (Barbosa Canovas et al., 1987 e Schubert, 1987).

No caso de formas simples tais como a esfera ou cilindro, o tamanho é explicitamente determinado por uma ou várias dimensões (Schubert, 1987). Contudo, partículas que formam materiais em pó raramente tem formas simples, principalmente produtos alimentícios. Esses produtos são, essencialmente, de origem orgânica e apresentam grande diversidade de estrutura, uma vez que possuem composições químicas complexas (Barbosa Canovas et al., 2005).

A descrição do tamanho de partículas com formas irregulares é feita por meio de dimensões equivalentes. Dimensões equivalentes são as dimensões de uma partícula imaginária regular, com a mesma propriedade física que a partícula irregular que está sendo medida. As mais usadas são: diâmetro equivalente a uma esfera com mesmo volume, velocidade de sedimentação ou área superficial, e diâmetro equivalente a um círculo com mesma área projetada ou perímetro. Os diâmetros estatísticos como o diâmetro de Martin e o diâmetro de Feret também são utilizados. Eles são determinados (normalmente por microscopia) quando uma dimensão linear paralela a um eixo fixo é medida. Os diâmetros estatísticos podem ser muito diferentes entre si a depender da forma da partícula. Dessa forma, é recomendável que o tamanho de partícula característico seja selecionado de acordo com as suas propriedades ou propriedades do processo (Barbosa Canovas et al., 2005).

Existem diferentes métodos *off-line*, *at-line*, *on-line* e *in-line* para determinação do tamanho de partícula. Nos métodos *off-line* as medidas são tomadas a partir de amostras retiradas do processo. Dentre os métodos *off-line*, os mais conhecidos são peneiramento, processamento de imagens e difração a laser. Esses métodos podem consumir tempo e trabalho para a preparação de amostras e as informações não são imediatas (Burggraeve et al., 2010). Com o desenvolvimento de tecnologias analíticas de processo (PAT) desenvolveu-se o interesse e a necessidade da substituição de métodos de análises *off-line* por métodos *at-line*, *on-line* e *in-line* (Burggraeve et al., 2013).

As técnicas *at-line*, *in-line* e *on-line* apresentam características importantes como a não destruição das amostras, curto tempo de medição e permitem várias configurações. Nas técnicas *at-line*, a amostragem é feita de maneira manual e as amostras retiradas são direcionadas para o equipamento de medição. As medições *on-line* envolvem um dispositivo de amostragem automática para desviar as amostras coletadas do processo para o equipamento de medição e, geralmente, a amostra é retornada ao do processo. E, por fim, as medições *in-line* são aquelas em que as medições são feitas dentro do processo sem que amostras sejam retiradas (Burggraeve et al., 2013).

Neste trabalho o monitoramento do tamanho de partícula foi feito *in-line*. O item 2.5 apresenta exemplos de métodos *in-line* assim como estudos recentes que fizeram uso deles. Maior ênfase é dada à técnica de velocimetria de filtro espacial empregada pela sonda Parsum IPP 70-S, equipamento utilizado neste estudo.

#### **2.4.2 Fluidez**

A capacidade que determinado material particulado tem de escoar facilitando o seu carregamento, descarregamento e dosagem é chamada de fluidez (Schubert, 1987). O nível de fluidez de um material particulado depende das condições ambientais, como temperatura e umidade, e das propriedades físicas e morfológicas do produto. Dentre as características do próprio material que afetam a sua capacidade de escoamento podem ser citadas a porosidade, o tamanho, a distribuição do tamanho das partículas e as forças de atração entre os sólidos (Schubert, 1987; Barbosa Canovas et al., 2005 e Turchiuli et al., 2005). Segundo Teunou et al. (1999), o tamanho de partícula é uma das características mais determinantes. E, geralmente,

pós com partículas de dimensões maiores que 200  $\mu\text{m}$  escoam livremente, enquanto os pós finos são sujeitos a coesão e tem baixa fluidez.

Índices simples foram propostos para estimar a fluidez de pós como o índice de Hausner (HR) e o índice de Carr ( $I_{\text{Carr}}$ ) que são calculados a partir da densidade do leito sem compactação ( $\rho_b$ ) e da densidade do leito compactado ( $\rho_t$ ), conforme as equações 2.1 e 2.2, respectivamente (Geldart et al., 1984; Turchiuli et al., 2005). A Tabela 2.1 apresenta a estimativa da fluidez com base no índice Hausner e a Tabela 2.2 com base no índice de Carr.

$$HR = \rho_t / \rho_b \quad 2.1$$

$$I_{\text{Carr}} = (\rho_t - \rho_b) / \rho_t \cdot 100 \quad 2.2$$

Tabela 2.1: Relação entre o índice de Hausner (HR) e o nível de fluidez.

HR	Nível de fluidez
HR < 1,2	Escoa livremente
1,2 < HR < 1,4	Intermediário
HR > 1,4	Coesivo

Fonte: (Turchiuli et al., 2005).

Tabela 2.2: Relação entre o índice de Carr ( $I_{\text{Carr}}$ ) e o nível de fluidez.

$I_{\text{Carr}}$ (%)	Nível de fluidez
$I_{\text{Carr}} < 15$	Escoa livremente
$15 < I_{\text{Carr}} < 20$	Bom escoamento
$20 < I_{\text{Carr}} < 35$	Moderado
$35 < I_{\text{Carr}} < 45$	Coesivo
$I_{\text{Carr}} > 45$	Muito coesivo

Fonte: (Turchiuli et al., 2005)

### 2.4.3 Instantaneização

Segundo Schubert (1987), as propriedades de instantaneização são as mais desejáveis nos produtos dos processos de aglomeração e podem ser medidas pelas quatro etapas seguintes, que ocorrem quando um pó seco é adicionado sobre a superfície de um líquido:

- Penetração do líquido no sistema poroso por capilaridade. A capacidade que o material apresenta de ser penetrado pelo líquido é chamada de "molhabilidade".

- Imersão das partículas ou porções do pó no líquido.
- Dispersão das partículas do pó no líquido com pouca agitação.
- Dissolução das partículas no líquido, desde que sejam solúveis.

Essas quatro etapas podem ocorrer de maneira individual e sequencial, mas algum grau de sobreposição pode acontecer, dependendo da quantidade de material envolvido. A facilidade com que o líquido penetra na estrutura porosa é, na maioria das vezes, o que controla todo o processo e é fortemente dependente do tamanho e da natureza da superfície da partícula. Já a capacidade de imersão é dependente não só do tamanho como da densidade da partícula e quanto melhor for a imersão melhor será a dispersão do material (Barbosa Canovas et al., 2005).

Um material em pó será considerado com boas propriedades de instantaneização quando estas etapas forem concluídas em alguns segundos. A instantaneidade de um pó pode ser determinada por diferentes métodos experimentais que se baseiam na medição do tempo necessário para que ocorra a saturação do líquido, com determinada quantidade de material adicionada sobre a sua superfície (Turchiuli et al., 2005).

## **2.5 MONITORAMENTO EM TEMPO REAL DO TAMANHO DAS PARTÍCULAS**

O monitoramento de processos de aglomeração em um primeiro momento era feito apenas pelo acompanhamento dos parâmetros do processo como, por exemplo, a temperatura e umidade do ar de entrada e de saída. Entretanto, com o desenvolvimento de ferramentas de análise que fornecem rapidamente informações relacionadas às propriedades físicas e/ou químicas dos materiais, o monitoramento e/ou controle dos processos de aglomeração incorporaram medidas diretas das características do material (Burggraeve et al., 2013).

O uso de diferentes técnicas de monitoramento em tempo real tem sido reportado na literatura para controle e determinação do ponto de parada em processos de aglomeração. Exemplos dessas técnicas são espectroscopia de infravermelho (*Near Infrared - NIR*) (Nieuwmeyer et al., 2007 e Tok et al., 2008), refletância de feixe focado (*Focused Beam Reflectance Measurements - FBRM*) (Tok et al., 2008 e Alshihabi et al., 2013) e velocimetria de filtro espacial (VFE) (*Spatial Filter Velocimetry - SFV*) (Lipsanen et al., 2008; Närvänen et al., 2009; Burggraeve et al., 2010; Wiegel et al., 2016 e Andreola et al., 2018).

A técnica de velocimetria de filtro espacial (VFE) tem recebido bastante atenção no campo da pesquisa e no setor industrial, especialmente no setor farmacêutico, para aplicações em processos de recobrimento e granulação em leito fluidizado (Silva, 2015). Essa técnica utiliza sondas compactas para o monitoramento em tempo real do tamanho e da velocidade de partículas sólidas. Ela está sendo empregada para melhor compreensão e controle de processos de aglomeração e resultados consistentes têm sido observados. Exemplos dos bons resultados obtidos são os por Burggraeve et al. (2010), Dieter et al. (2011), Huang et al. (2010), Lipsanen et al. (2008), Närvänen et al. (2009), Silva e Taranto (2015) e Andreola (2017).

A VFE utiliza o comprimento da corda para expressar o tamanho das partículas com base na sombra formada quando um feixe de laser atravessa as partículas em movimento aleatório (Burggraeve et al., 2010). A sonda Parsum (IPP70-S, Malvern Instruments) é um dos dispositivos que utiliza o princípio de VFE para a medida de tamanho de partículas. Silva e Taranto (2015) enumeraram algumas vantagens de utilização dessa sonda para monitoramento em tempo real do tamanho das partículas. Dentre as vantagens destacam-se o fato de ser um método de medição bem estabelecido (patenteado) que pode trabalhar com sistemas particulados altamente concentrados, altas temperaturas, alta umidade e materiais gelatinosos, pegajosos ou abrasivos com partículas em movimentos aleatórios (aplicação de fluidização). Além disso, é capaz de determinar uma ampla faixa de tamanhos (50  $\mu\text{m}$  a 6000  $\mu\text{m}$ ) e de velocidade da partícula (0,01 a 50 m/s) e processa centenas de partículas por segundo.

Dentre os trabalhos com a sonda Parsum IPP70-S, Burggraeve et al. (2010) e Andreola (2017) a utilizaram para melhor compreensão da influência dos parâmetros do processo na aglomeração em leito fluidizado. Para Burggraeve et al. (2010), a técnica de VFE apresentou bom potencial de aplicação para o entendimento e monitoramento do processo de aglomeração, assim como possibilidade de emprego como uma tecnologia analítica de processo. Andreola (2017) realizou uma criteriosa validação das medições feitas pela sonda para utilização do monitoramento do tamanho de proteína de arroz. A autora concluiu que a VFE mostrou-se ser um método adequado para o monitoramento do tamanho das partículas durante o processo de aglomeração em leito fluidizado, de modo que detectou alterações de tamanho das partículas tanto na etapa de atomização de ligante como na secagem. O monitoramento *in-line* do tamanho das partículas permitiu compreender o efeito da vazão e

concentração de ligante e temperatura do ar de fluidização no tamanho médio final e rendimento do processo.

A sonda Parsum foi um dos instrumentos utilizados por Silva (2015) para monitoramento e controle em tempo real do processo de recobrimento da celulose microcristalina. O autor conseguiu detectar fases de recobrimento e aglomeração, além dos impactos da variação da vazão da suspensão de recobrimento e aplicação de controle de processo sobre o comportamento dinâmico do sistema. Na comparação entre VFE e técnicas *off-line* de difração a laser e microscopia automatizada, os valores de  $D_{50}$  (tamanho médio) foram os que mais se aproximaram, uma vez que os tamanhos  $D_{10}$  e  $D_{90}$  sofrem muitas influências pelas condições de dispersão onde ocorre a quebra de partículas, sensibilidade do equipamento e o próprio princípio físico de medição.

Desse modo, e pelo fato de o tamanho da partícula ser determinante nas propriedades dos materiais em pó, o monitoramento em tempo real do tamanho das partículas torna-se uma importante ferramenta. Por meio desse monitoramento torna-se possível, além de monitorar o tamanho dos grânulos, acompanhar a qualidade da fluidização e determinar o ponto de parada do processo. A análise dos dados obtidos por equipamentos como a sonda Parsum também é interessante no estudo do processo de aglomeração de diferentes materiais de modo a compreender o efeito dos parâmetros do processo na qualidade do processo e do produto aglomerado.

## 2.6 GOMA ARÁBICA

A goma arábica é produzida a partir do exsudado de plantas do gênero *Acácia* que é comum em diversos países. Entretanto, a região do semiárido na África subsaariana é a responsável por praticamente toda a produção mundial de goma arábica (Whistler, 1993), sendo o maior exportador o Sudão (Patel e Goyal, 2015). Essa goma é um exsudado natural, ou seja, uma massa viscosa liberada naturalmente em um processo chamado de gomose, para selar incisões feitas no córtex de caules e galhos de acácias (Whistler, 1993 e Al-Assaf et al., 2007). Centenas de espécies de acácias produzem exsudado gomoso, contudo apenas as espécies *Acacia senegal* e *Acacia seyal*, são autorizadas para aplicações em alimentos (Baray, 2009). O exsudado das árvores é seco ao sol e endurece formando nódulos translúcidos com até 6 cm de diâmetro, como mostrado na Figura 2.8.

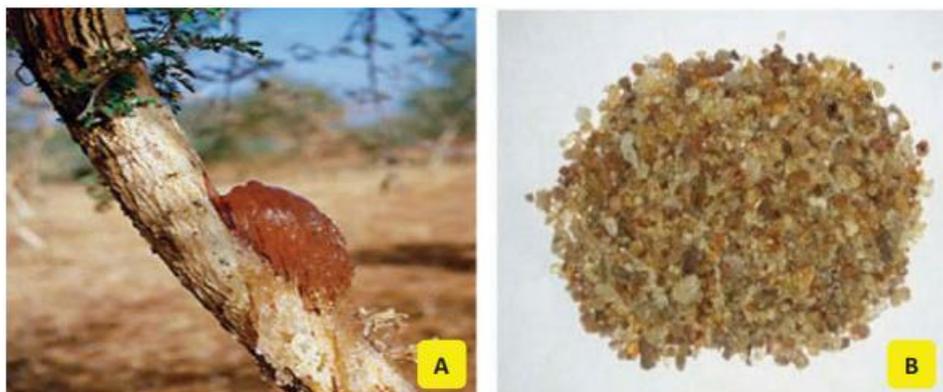


Figura 2.8: A) Exsudado no caule da acácia; B) Grãos de goma arábica.

Fonte: Patel e Goyal (2015).

No processo de produção da goma arábica comercial, os nódulos são colhidos manualmente e submetidos à secagem natural e classificação. Esse material passa por processos mecânicos de moagem para que o tamanho seja reduzido de modo que os grãos tenham entre 0,5 mm e 6 mm. Nessa etapa do processo também ocorrem diferentes tipos de limpeza, mas a goma ainda contém materiais indesejados que devem ser eliminados. A limpeza completa ocorrerá somente após a dissolução da goma arábica em água, centrifugação desta solução e filtração em filtros ultrafinos. A filtração é seguida de pasteurização para eliminação de patógenos e redução da contagem microbiana total. A solução pasteurizada é, então, seca em *spray dryer*, obtendo-se um pó fino pronto para ser utilizado sem a necessidade de qualquer purificação física ou microbiológica ou processamento químico (Idris e Haddad, 2012). Esse pó fino, todavia, é de difícil manuseio e não possui boas propriedades de dispersão e solubilidade, sendo a etapa de aglomeração importante na melhoria dessas propriedades.

A goma arábica é um polissacarídeo complexo e a sua macromolécula é composta por três frações com diferentes peso molecular e teor de proteína. A maior fração é formada por arabinogalactana (AG), que tem baixo teor de proteína, seguida por um complexo de arabinogalactana e proteína (AGP), com alto peso molecular e cerca de 10% de proteína e a menor fração é de glicoproteína, com teor de proteína acima de 50% (Nussinovitch, 1997 e Williams e Phillips, 2003). O complexo AGP é responsável pelas propriedades emulsificantes e estabilizantes de longo prazo em alimentos e cosméticos que contêm emulsões do tipo óleo-água e são diferenciais da goma arábica em relação a outros hidrocolóides (Dror et al., 2006; Williams e Phillips, 2009 e Idris e Haddad, 2012).

As características físico-químicas da goma arábica já foram estudadas por diversos pesquisadores como Randall et al. (1989); Sanchez et al. (2002); Al-Assaf et al. (2005b; a); Al-Assaf et al. (2007) e Elmanan et al. (2008). Dentre esses estudos, Elmanan et al. (2008) concluíram que tanto a goma de origem da *Acacia senegal* e quanto a de origem da *Acacia seyal* são capazes de diminuir a tensão superficial na interface das diferentes fases e formam uma membrana em torno das gotículas de óleo evitando que elas se unam desfazendo a emulsão. Além de emulsificante e estabilizante, a goma arábica apresenta relativa solubilidade em água, quando agitada, e menor aumento na viscosidade de soluções quando comparada a outras gomas não-hidrolisadas (Whistler, 1993). Sendo, portanto, muito fácil adicionar uma quantidade significativa de goma arábica em muitos produtos alimentares sem que suas características originais sejam alteradas (Baray, 2009).

Dentre as aplicações da goma arábica em alimentos podem ser citadas a indústria de bebidas (sucos de frutas, refrigerantes e vinho), produtos lácteos, produtos de panificação, confeitaria, molhos e temperos, barras de cereais, shakes substitutos de refeição e pós, comprimidos ou nutracêuticos (Baray, 2009 e Patel e Goyal, 2015). A capacidade de formação de filme e propriedades de estabilização de emulsões fazem com que as gomas sejam utilizadas como material de parede em processos de microencapsulação. Dentre todas as gomas, a goma arábica destaca-se por suas excelentes propriedades de emulsificação (Gharsallaoui et al., 2007). Alguns estudos comprovam a eficiência da goma arábica como material de parede na encapsulação por *spray dryer* de óleo de cominho (Kanakdande et al., 2007), óleo de cardamomo (Krishnan et al., 2005) e óleo de canela (Vaidya et al., 2006).

Além da manutenção de emulsões, outras características de alimentos também podem ser melhoradas com a utilização da goma arábica. Recentemente, Guan e Zhong (2014; 2015) verificaram que a goma arábica pode estabilizar soluções de pigmentos como norbixina e antocianinas. Esses autores sugeriram que a goma arábica forma um complexo com as moléculas desses pigmentos de modo a protegê-los. O complexo de  $Fe^{2+}$  e goma arábica proporcionou estabilidade de norbixina à acidez e ao calor (Guan e Zhong, 2014) e o complexo formado com a goma arábica proporcionou a manutenção da cor e também da atividade antioxidante de antocianinas (Guan e Zhong, 2015).

Além de proporcionar melhoria das características de diversos alimentos industrializados, a goma arábica é um material seguro para os seres humanos. O uso da goma

arábica como espessante, estabilizante e emulsificante em alimentos é mundialmente aceito e o seu código de identificação é INS 414. A Agência Nacional de Vigilância Sanitária (ANVISA) reconhece, baseada em decisões do Comitê FAO/WHO de Especialistas em Aditivos Alimentares (JECFA), a goma arábica como aditivo com ingestão diária aceitável (IDA) não especificada ou não limitada. Desta maneira a quantidade máxima de aditivo a ser utilizada é aquela necessária para alcançar o efeito desejado nos alimentos e não representa um perigo para a saúde (Islam et al., 1997; ANVISA, 2010 e Phillips e Phillips, 2011).

A goma arábica pode ser considerada também uma fonte de fibras dietéticas conforme a definição de fibras adotado pelo *Codex Alimentarius*, pois é um polissacarídeo com mais de dez unidades monoméricas que não é hidrolisado por enzimas endógenas no intestino delgado dos humanos e tem mostrado ter um efeito fisiológico benéfico à saúde, comprovado cientificamente por autoridades competentes (Viebke et al., 2014). Dentre os benefícios à saúde, a goma arábica tem efeito prebiótico sendo capaz aumentar seletivamente a proporção de bactérias do ácido lático e bifidobactérias em indivíduos saudáveis (Cherbut et al., 2003).

No Brasil, a ANVISA aprova o uso da goma arábica também como ingrediente e devendo ser declarada na tabela de informação nutricional como fibra alimentar, não sendo permitido especificá-la caso esteja presente em quantidade menor que 0,5 g, valor mínimo para declaração de fibra alimentar (ANVISA, 2016).

Considerando a vasta utilização da goma arábica, o fato dela ser encontrada predominantemente na forma de pó com partículas finas, o que exige um certo gasto de energia durante a sua solubilização, e o escasso material científico sobre a sua aglomeração, o estudo deste processo é muito pertinente. O entendimento dos mecanismos de aglomeração da goma arábica poderá melhorar os processos praticados industrialmente e, conseqüentemente, aprimorar as propriedades de manuseio e instantaneização do produto.

## **2.7 PROPRIEDADES DOS AGENTES LIGANTES**

Na aglomeração por via úmida, os ligantes aderem física ou quimicamente à superfície das partículas formando uma ponte de ligação entre elas e aumentando a resistência do produto aglomerado. Para que ocorra a aglomeração é preciso que o líquido umidifique os sólidos. Nesse processo, a concentração, a viscosidade, as propriedades mecânicas da solução ligante e a interação entre ligante e material a ser aglomerado são muito importantes e definem

a eficiência do agente ligante. Além disso, os agentes ligantes precisam ser compatíveis com o material a ser aglomerado e com o seu uso final (Pietsch, 2002; Mort, 2005 e Dhanalakshmi e Bhattacharya, 2011).

Os ligantes utilizados em processos de aglomeração podem ser substâncias de natureza orgânica ou inorgânica. Água, sais, óxido de magnésio e cal são exemplos de ligantes inorgânicos mais utilizados. Já caseínas, alginatos, compostos de celulose, dextrina, gelatina, gomas naturais (ex. goma arábica), maltose, álcool polivinílico (PVA), amidos, açúcares, polpas vegetais e ceras são exemplos de ligantes orgânicos (Pietsch, 2002).

Iveson et al. (2001) relataram o efeito da viscosidade do ligante e do ângulo de contato do sistema sólido-líquido sobre o processo de aglomeração e produto granulado. Segundo esses autores, o aumento da viscosidade do agente ligante aumenta as forças viscosas entre as partículas e, comumente, diminui a taxa de consolidação. Entretanto, parece existir um valor crítico de viscosidade do ligante, abaixo do qual as forças de atrito entre as partículas são dominantes, não sendo a taxa de consolidação afetada pela viscosidade do ligante.

Jinapong et al. (2008) estudaram a influência da concentração de maltodextrina nas propriedades de “leite” de soja aglomerado em leite fluidizado. Eles observaram que a aglomeração ocorre utilizando água pura, mas o aglomerado obtido, assim como aquele obtido para a concentração mais alta de maltodextrina (20,0%), possui alta porcentagem de partículas finas. Para as outras concentrações de maltodextrina estudadas (5,0%, 10,0%, e 15,0%) o produto apresentou quantidades insignificantes de partículas finas. Resultado semelhante foi encontrado por Turchiuli et al. (2005) na aglomeração de zeína. Nas condições de menor concentração a aglomeração é lenta em decorrência da maior quantidade de água a ser evaporada, sendo possível melhor consolidação do aglomerado através de pontes de ligação mais resistentes (Turchiuli et al., 2005). As melhores propriedades de escoamento, umedecimento e capacidade de dispersão para o “leite” de soja em pó foram encontradas para os aglomerados de maior tamanho, que foram aqueles produzidos com soluções ligantes de concentração intermediária, 10,0% de maltodextrina (Jinapong et al., 2008).

A natureza do agente ligante também pode ser determinante no mecanismo de aglomeração assim como observado pelo estudo de Hirata (2015) no qual o aumento da concentração da solução apresentou efeito distinto no processo de aglomeração a depender do soluto utilizado, goma arábica ou sacarose. Além disso, soluções de sacarose e de goma arábica

em diferentes concentrações e, conseqüentemente, com diferentes características de tensão superficial, viscosidade e ângulo de contato, influenciaram de maneiras distintas a aglomeração de pectina de alto grau de metoxilação em leito fluidizado (Hirata, 2015). A diminuição da tensão superficial e do ângulo de contato influenciaram negativamente o tamanho médio da partícula para todas as concentrações de goma arábica utilizadas. Já para a solução de sacarose este efeito foi visto apenas na solução mais concentrada (Hirata, 2015).

Hemati et al. (2003) estudaram a aglomeração de partículas de areia com soluções de carboximetilcelulose (CMC) em diferentes concentrações. Os resultados encontrados foram relacionados na Equação 2.3, proposta por Rumpf et al. (1958 *apud* Hemati et al., 2003), que define a força de adesão como o produto da tensão interfacial e cosseno do ângulo de contato.

$$\sigma_T = \gamma_{LV} \cos\theta \frac{6}{\phi d_{pm}} \frac{1 - \chi}{\chi} \quad 2.3$$

Sendo  $\gamma_{LV}$  a tensão interfacial entre o líquido e o ar,  $\theta$  o ângulo de contato entre a solução e o sólido,  $\phi$  o fator de forma,  $d_{pm}$  o diâmetro médio da partícula e  $\chi$  a porosidade do grânulo. Assim como observado por Hirata (2015), a diminuição no valor de  $\gamma_{LV}$  foi prejudicial à formação de grânulos. No tocante ao ângulo de contato, a formação de grânulos foi favorecida por ângulos de contato menores (Hemati et al., 2003). Entretanto, para partículas porosas, ângulos de contato muito baixos não são necessariamente equivalentes a uma boa nucleação, pois podem significar pouco tempo de disponibilidade da solução ligante na superfície da partícula (Hirata, 2015).

Apesar de a goma arábica ser reportada como um agente ligante, são poucos os estudos encontrados que analisam o seu comportamento e influência sobre a aglomeração em leito fluidizado. A goma arábica é um ligante viável pois pode proporcionar pontes firmes e boa resistência ao aglomerado (Barbosa Canovas et al., 2005). Em comparação com solução de sacarose a goma arábica promoveu maior aumento no tamanho da partícula na aglomeração de pectina de alto teor de metoxilação (Hirata, 2015). O efeito da goma arábica e da maltodextrina em diferentes concentrações (1,0 a 5,0%) sobre as propriedades do produto na aglomeração de amido de milho foram estudados por Ghosal et al. (2010). Os dois tipos de ligantes melhoraram a molhabilidade do pó e diminuíram a densidade do leito de partículas e, quanto maior a concentração maior o efeito positivo.

Fuchs et al. (2006) utilizaram uma emulsão de goma arábica e óleo vegetal como solução ligante na aglomeração de maltodextrina em pó (100  $\mu\text{m}$ ) em leite fluidizado. O objetivo principal do trabalho foi obter um material em pó que possuísse boas propriedades de manuseio e que, ao mesmo tempo, protegesse os componentes do óleo da oxidação. O produto obtido apresentou fluidez aceitável, diâmetro médio 240  $\mu\text{m}$  e uma boa resistência mecânica. Isto indica que a goma, além de um bom material de parede, pode ser um bom agente ligante.

### 2.7.1 Inulina

A inulina é um nome genérico que abrange todos os oligo e polissacarídeos chamados frutanos formados por uma cadeia principal com 2 a 60 unidades de frutose, unidas por ligações  $\beta$ -(2,1) – frutofuranosídicas (Apolinario et al., 2014). Ela possui uma unidade de glicose terminal e sua fórmula pode ser descrita como GF<sub>n</sub>, onde G representa a molécula de glicose, F a molécula de frutose e n o número de unidades de frutose (Loo et al., 1995 e Meyer e Blaauwhoed, 2009). A estrutura química da inulina é apresentada na Figura 2.9. Estes carboidratos podem ser encontrados em muitas plantas economicamente importantes, tais como chicória, alcachofra de Jerusalém, alho, cebola, cevada, centeio e trigo. No entanto, a produção industrial de inulina é, quase que exclusivamente a partir de raízes de chicória (Meyer e Blaauwhoed, 2009).

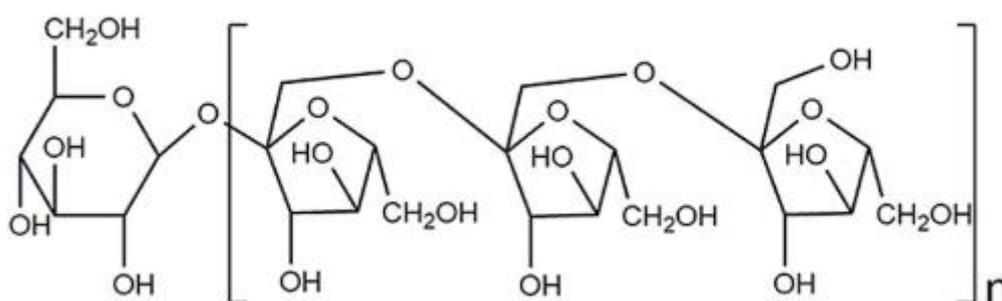


Figura 2.9: Estrutura química da inulina.

Fonte: Li et al. (2019).

A inulina tem atraído a atenção nas indústrias de alimentos e farmacêuticas em decorrência de alguns benefícios. Ela é uma fibra solúvel com efeito bifidogênico, ou seja, estimula o crescimento de bifidobactérias que são consideradas benéficas à saúde (Gibson et

al., 1995). Alimentos funcionais têm sido desenvolvidos através da adição de inulina para aumentar o seu teor de fibra dietética (Komatsu et al., 2013).

Além do efeito bifidogênico inulina é reconhecida por apresentar outros efeitos positivos sobre a saúde humana e também utilizada para melhorar os atributos de qualidade em alimentos industrializados. Dentre os benefícios a saúde podem ser citados o aumento da absorção de minerais, melhoria no perfil lipídico do sangue e redução no risco de doenças gastrointestinais como síndrome do intestino irritável e doença de Crohn (Shoab et al., 2016). E, dentre as propriedades que são utilizadas para melhorar os atributos de qualidade em alimento estão a capacidade gelificante na presença de água (O'brien et al., 2003), capacidade de ser utilizada como substituto de gorduras (Zimeri e Kokini, 2003) e substituto de açúcares (Meyer et al., 2011).

Estudos recentes relatam efeito complementar entre a goma arábica e a inulina. Marzorati et al. (2015) estudaram este efeito utilizando o Simulador do Ecosistema Microbiano Humano (SHIME ®) e concluíram que a associação entre goma arábica e inulina muda o perfil de fermentação das fibras no cólon tornando-a mais lenta, o que pode possibilitar aumento do conteúdo de fibras sem a observação de eventos de intolerância. Já para Daguet et al. (2016), a goma arábica e a inulina podem ter efeito complementar na modulação da composição e da atividade da microbiota intestinal, resultando em uma resposta anti-inflamatória específica da região do cólon.

A inulina é levemente solúvel em água para temperaturas abaixo de 50 °C. A solubilidade tende a aumentar com o aumento da temperatura sendo preferível solubilizá-la em temperaturas entre 80 e 90 °C. Alguns estudos analisaram a solubilidade de inulina comercial e confirmaram que com o aumento da temperatura ocorre aumento da solubilidade. À temperatura de 50 °C a solubilidade da inulina foi de 1,2% e, para temperatura de 90 °C, foi de aproximadamente 40,0% (Kim et al., 2001 e Bot et al., 2004).

As soluções de inulina em concentrações abaixo de 15,0% apresentam baixa viscosidade e acima dessa concentração possuem tendência à formação de gel (Meyer e Blaauwhoed, 2009). O comportamento dos géis puros de inulina em água já foi estudado. Foi reportado comportamento newtoniano para géis de inulina a concentrações de 20,0%, já os géis com concentração igual a 30% e 40% apresentaram comportamento não newtoniano do tipo pseudoplástico com apresentação de tensão residual. Nas concentrações mais altas os géis de

inulina seguiram um comportamento reológico de Herschel-Bulkley (Zimeri e Kokini, 2003). As características físico-químicas podem variar com a origem da inulina. O precipitado de inulina obtido a partir de raízes de chicória apresentou comportamento reológico não-newtoniano de fluido pseudoplástico representado segundo o modelo de Lei da Potência (Leite, 2001). A inulina obtida a partir de raízes de chicória apresentou comportamento reológico altamente pseudoplástico mesmo para concentrações mais baixas de 12,5; 16 e 19,5 °Brix (Toneli, 2006). A viscosidade aparente dos géis aumenta com o aumento da temperatura entre 25 e 53 °C, sendo que a partir de 60 °C, ocorre uma inversão do comportamento da viscosidade aparente devido à hidrólise (Toneli, 2006). O comportamento reológico das soluções de inulina pode, portanto, limitar a quantidade utilizada na solução ligante e influenciar no processo de aglomeração.

Não foram encontrados estudos da utilização de soluções de inulina como ligante no processo de aglomeração em leito fluidizado. Tais soluções já foram testadas e consideradas viáveis como material de parede em microencapsulamento de óleo de peixe (Botrel et al., 2014) e de óleo de gengibre (Fernandes et al., 2016) em *spray dryer*. Os produtos apresentaram umidade desejada e o aumento na concentração de inulina proporcionou melhor molhabilidade e instantaneização ao material em pó. A presença de inulina também melhorou a molhabilidade e diminuiu a absorção de água durante o armazenamento do material em pó obtido na microencapsulamento de óleo de alecrim em *spray dryer* (Fernandes, 2013).

Em decorrência das características das soluções de inulina e da possibilidade de melhorar propriedades nutricionais e funcionais do material aglomerado, é interessante analisar o seu comportamento como solução ligante na aglomeração em leito fluidizado. Essas soluções podem apresentar uma alternativa aos materiais classicamente usados e que nada acrescentam ao produto final.

### 3 MATERIAL E MÉTODOS

#### 3.1 MATERIAL

##### 3.1.1 Matéria-prima

A matéria-prima utilizada nesse trabalho foi a goma arábica obtida por *spray dryer* comercializada com o nome de SprayGumBB® pela empresa Nexira Brasil Comercial (São Paulo/SP, Brasil). As características físico-químicas, fornecidas pela empresa, para a SprayGumBB, são apresentadas na Tabela 3.1.

Tabela 3.1: Características físico-químicas da matéria-prima.

Umidade	$\leq 10\%$
Cinzas totais	$\leq 4\%$
Cinza insolúvel em ácido	$\leq 0,5\%$
Matérias insolúveis em ácido	$\leq 0,15\%$
pH	4,1 a 4,8
Viscosidade a 25% (mPa·s)	60 a 110

Fonte: NEXIRA (2015).

##### 3.1.2 Ligantes

As soluções ligantes utilizadas no processo de aglomeração foram água destilada, soluções da própria goma arábica em pó adquirida da Nexira Brasil Comercial e soluções de inulina. As soluções da própria goma foram utilizadas com o objetivo de minimizar as alterações na constituição da matéria-prima. As soluções de inulina foram utilizadas com o objetivo de promover a associação de goma arábica com material prebiótico. As soluções de inulina foram preparadas com inulina em pó de nome comercial Frutafit® IQ, fabricada pela empresa Sensus (Roosendaal, Holanda) e comercializada pela SweetMix (Sorocaba/SP, Brasil). A Tabela 3.2 apresenta as características físico-químicas da inulina segundo o fabricante.

Tabela 3.2: Características físico-químicas da Frutafit®.

Umidade	3%
<i>Composição da matéria seca</i>	
Carboidratos	≥ 99,5%
Inulina	≥ 90%
Frutose, glicose, sacarose	≤ 10%
Cinzas	≤ 0,2%
Comprimento médio da cadeia (monômeros)	8 a 13
Fibras dietéticas (g/100 g)	90
Índice glicêmico	14
pH	5,0 a 7,0

Fonte: SENSUS (2015).

## 3.2 SISTEMA EXPERIMENTAL

### 3.2.1 Leito fluidizado

Os ensaios de aglomeração foram realizados em leito fluidizado localizado no Laboratório de Processos Termofluidodinâmicos (LPTF) da Faculdade de Engenharia Química da Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP). O mesmo leito já havia sido utilizado com sucesso para processos de aglomeração de proteína concentrada de arroz (Andreola, 2017) e proteína isolada de ervilha (Nascimento, 2017). Um esquema do sistema experimental é apresentado na Figura 3.1.

O leito fluidizado (1) é composto por uma estrutura principal formada por uma base cônica, que possui 0,15 m de altura, 0,075 m de diâmetro interno inferior e 0,15 m de diâmetro interno superior, unida a uma coluna cilíndrica que possui diâmetro interno de 0,15 m e altura de 0,60 m. Tanto a base cônica como a coluna cilíndrica são construídas em acrílico Plexiglas®, de modo que é possível a visualização do comportamento do material no seu interior. A coleta de finos elutriados é feita pelo ciclone (23), localizado na parte superior. A distribuição do ar na entrada do leito é realizada por uma placa perfurada de aço inoxidável (5), com 1,62 mm de espessura e orifícios de 1 mm de diâmetro, distribuídos em arranjo triangular com espaçamentos de 8,5 mm. Uma tela de aço inoxidável com abertura de 33,0 µm foi colocada na parte superior da placa distribuidora de ar para evitar a passagem das partículas para a câmara *plenum*.

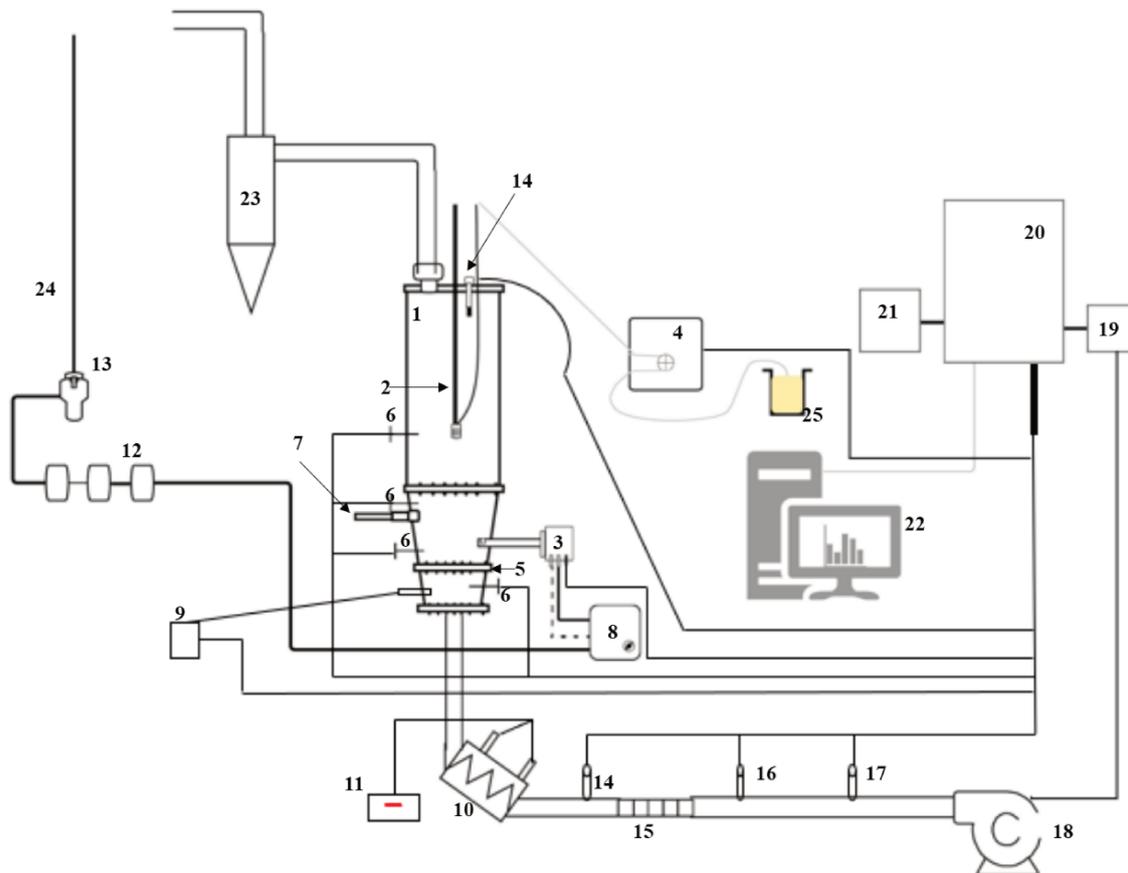


Figura 3.1: Esquema do sistema experimental.

LEGENDA – (1) Leito fluidizado; (2) bico aspersor; (3) Sonda Parsum IPP 70-S; (4) bomba peristáltica; (5) placa distribuidora de ar; (6) termoresistência do tipo pt 100; (7) amostrador; (8) regulador da purga de ar comprimido da sonda Parsum; (9) transdutor diferencial de pressão; (10) resistência elétrica; (11) controlador de temperatura; (12) sistema de filtros coalescentes; (13) regulador de pressão da linha de ar comprimido; (14) termohigrômetro; (15) leito de sílica-gel; (16) anemômetro de fio quente; (17) transdutor de pressão absoluta; (18) soprador; (19) inversor de frequência; (20) sistema elétrico e de aquisição de dados; (21) baterias; (22) computador; (23) ciclone; (24) linha de ar comprimido, (25) béquer com líquido ligante.

O ar de fluidização é fornecido por um soprador de ar (WEG, 7,5 hp) (18), conectado a um inversor de frequência (19) (WEG, CFW 08) que regula a rotação do motor do soprador para manipulação da vazão de ar. O ar passa por uma tubulação de aço galvanizado e atravessa um leito de sílica gel (15). A velocidade do ar é determinada por um anemômetro de fio quente (16) (Delta OHM, HD2903TC2.2). Um aquecedor de resistência elétrica blindada de 2 kW (10), controlado por um regulador PID (Novus, N1100) (11), aquece o ar antes da sua entrada no leito. A temperatura é monitorada na câmara *plenum*, na base cônica e na coluna

cilíndrica por quatro termorresistências do tipo Pt-100 (6) (Novus, Ø 3,0 mm · 100 mm). A umidade relativa e temperatura de bulbo seco na entrada e saída do leito são medidas por sensores (RHT-XS, Novus) (14). A queda de pressão no leito é medida por um transdutor diferencial (Cole Parmer, 98073-12, faixa de leitura de 0 a 6,2 kPa) (9) e a pressão estática na linha é medida por um transdutor de pressão absoluta (NOVUS, NP300, faixa de leitura de 0 a 300 kPa) (17).

Uma bomba peristáltica (Cole Parmer, 7780-60, Masterflex L/S) (4) é utilizada para o transporte da solução ligante até um bico atomizador do tipo duplo fluido (Spraying Systems, SU12A) (2) que fornece um jato de geometria cônica com área de projeção circular. A pressão de atomização é fornecida por um compressor (Schulz, MSV 40 MAX 10 hp) e é regulada por um regulador de pressão (Norgren, B74G6AKQP3RMN) acoplado a um filtro.

Os sensores de pressão, de temperatura e de umidade são acoplados ao computador por um sistema de aquisição de dados, placa NI cDAQ-9172 (*National Instrument<sup>TM</sup>*) (20). A aquisição de dados se deu a uma taxa de amostragem de 400 Hz, tomando 2048 pontos, sendo o tempo de cada *loop* de aquisição de dados igual a 5,12 s. Os dados obtidos são processados pelo software Labview<sup>TM</sup> 8.6 através de instrumentos virtuais (VI) utilizando um computador (22) (Intel® Core<sup>TM</sup> i5).

Os sensores são acoplados a um módulo de entrada analógica NI 9205 (*National Instrument<sup>TM</sup>*), que adquire os valores das variáveis em tensão de 0 a 10 V. A bomba peristáltica e o inversor de frequência são acionadas por um módulo de saída analógica NI 9263 (0 a 10 V) (*National Instrument<sup>TM</sup>*). A interface entre o processo e a placa de aquisição de dados é feita por meio do software LabVIEW 8.6 (Laboratory Virtual Instrument Engineering Workbench), através de um instrumento virtual (VI) utilizando um computador (Intel® Core<sup>TM</sup> i5). O instrumento virtual utilizado para aquisição, processamento e monitoramento dos dados do processo foi adaptado daquele previamente desenvolvido e utilizado por Andreola (2017). Todos os sensores são energizados por meio de duas baterias seladas de 12 V ligadas em série (21), para evitar possíveis instabilidades nas medições, que podem ser ocasionadas por interferência da rede elétrica.

### 3.2.2 Sistema de monitoramento *in-line* do tamanho das partículas

O tamanho das partículas foi monitorado em tempo real por um dispositivo inserido dentro do leito de partículas durante os ensaios de aglomeração. Esse acompanhamento em tempo real possibilita a visualização da evolução do crescimento das partículas durante a aglomeração. O monitoramento foi feito utilizando-se a sonda Parsum (Parsum, IPP 70-S, Chemnitz, Alemanha) que utiliza a técnica de velocimetria de filtro espacial (*Spatial Filter Velocimetry – SFV*). Essa sonda é capaz de medir a velocidade e tamanho (corda) das partículas, por meio da projeção da superfície das partículas que passam através do seu sistema de medição. A faixa de corda de partícula que a sonda é capaz de medir é de 50 a 6000  $\mu\text{m}$  a depender do acessório dispersor utilizado.

A técnica de velocimetria de filtro espacial baseia-se na imagem da sombra de uma partícula, formada quando a partícula atravessa um feixe de laser, considerando que a imagem da sombra da partícula tem o mesmo tamanho (corda) da partícula. Conforme a partícula passa pelo volume de medição a imagem de sua sombra é projetada na matriz linear de fibras ópticas gerando um sinal. A frequência deste sinal ( $f_0$ ) é utilizada para determinar a velocidade da partícula que será igual a  $s \cdot f_0$ , em que  $s$  é a distância entre dois fotodetectores. À medida que as partículas atravessam o feixe, um sinal secundário é gerado por uma fibra óptica simples. Com base no tempo deste sinal secundário ( $t$ ), na velocidade da partícula em movimento ( $v$ ) e no diâmetro da fibra óptica simples ( $b$ ) o comprimento da corda ( $x$ ) pode ser calculado (Dieter *et al.*). Um esquema do princípio de medição da sonda Parsum por velocimetria de filtro espacial é apresentado na Figura 3.2.

A sonda Parsum IPP70-S possui poucos parâmetros a serem ajustados e um deles é o *ring buffer*. O *ring buffer* é um anel de armazenamento de dados e o número de partículas que compõe esse anel de armazenamento é determinado pelo usuário. Os dados de cada partícula são armazenados individualmente para a construção das distribuições do tamanho de partícula. As partículas são continuamente escritas no *ring buffer*. À medida que novos dados são armazenados os dados mais antigos são substituídos. A separação das partículas em classes de tamanhos para a construção de histogramas e da curva de distribuição começa a ser realizada antes que o *ring buffer* seja completamente construído. O tempo para que o *ring buffer* seja completamente preenchido depende do tamanho do seu tamanho, ou seja, da quantidade de

partículas utilizadas e dos processadores do computador empregado (Silva, 2015 e Andreola, 2017).

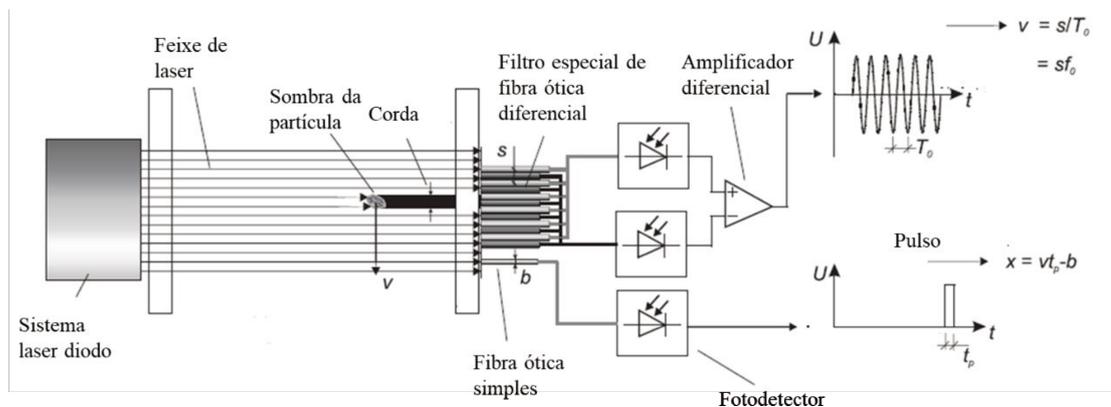


Figura 3.2: Esquema do princípio de medição da sonda Parsum IPP 70-S por velocimetria de filtro espacial.

Adaptado de Dieter et al. (2011)

Os dados de distribuição de tamanho são processados pelo *software Inline Particle Probe 7.14* e enviados para o LabVIEW através de protocolo *OPC Server* desenvolvido por Silva (2015). Os valores dos tamanhos característicos ( $D_{10}$ ,  $D_{50}$  e  $D_{90}$ ) com base em número e volume, as distribuições de tamanho das partículas em número e volume são apresentadas a cada 5,12 s, mesmo tempo de aquisição das demais variáveis monitoradas.

Além de definir o *ring buffer* é preciso conhecer a faixa de tamanho inicial do material a ser analisado e definir o nível de coincidência. O nível de coincidência é usado para eliminar coincidências das distribuições calculadas, que podem ocorrer quando pelo menos duas partículas passam pelo volume de medição simultaneamente e são interpretadas como uma única partícula. O *ring buffer* definido para utilização da sonda neste trabalho foi de 5000 partículas, conforme ensaios para a validação dos resultados apresentados pela sonda e detalhados no item 4.5. O nível de coincidência utilizado foi de 1,0%. Esse valor é utilizado para a maioria das aplicações de acordo com o manual de operação do equipamento e foi utilizado anteriormente com sucesso neste mesmo sistema experimental por Andreola (2017).

A sonda é construída em aço inox 316L e nela é fixado um dispersor de partículas, acessório D23. Uma fotografia da sonda Parsum IPP70-S e do seu acessório dispersor D23 é apresentado na Figura 3.3. O acessório D23 funciona como um dispersor de partículas que ocasiona um fluxo contínuo e individual de partículas e minimiza problemas de incrustação em

sistemas com alta concentração de partículas finas. Um sistema de ar comprimido é ligado a um regulador de pressão e um medidor de fluxo de ar comprimido de modo que o ar passa internamente pelo tubo de aço inox em duas linhas, denominadas de purga interna e externa. A purga interna tem como função deslocar as partículas para dentro do dispersor D23, forçando a passagem linear das partículas no feixe de laser. A purga externa expulsa as partículas que se depositam sob o D23, deixando o orifício de entrada das partículas livre de incrustações e hábil para a realização das leituras. A purga de ar interna é mantida constante e o fluxo de ar da purga externa é controlado por uma válvula solenoide.

O ar comprimido passa por um conjunto de filtros coalescentes, Figura 3.1 (12), (Parker Hannifin Ltda), antes de ser utilizado na sonda, para remoção de partículas sólidas e de óleo e água, para que não causem danos ao equipamento. O conjunto de filtros coalescentes é composto por três elementos filtrantes, o primeiro com porosidade padrão grau 10 (Parker, 3532 - 2300F10), o segundo com porosidade padrão de grau 6 (Parker, 3532 - 2300F06) e o terceiro é um elemento de carvão ativado (Parker, 3532 - 2300FAU).

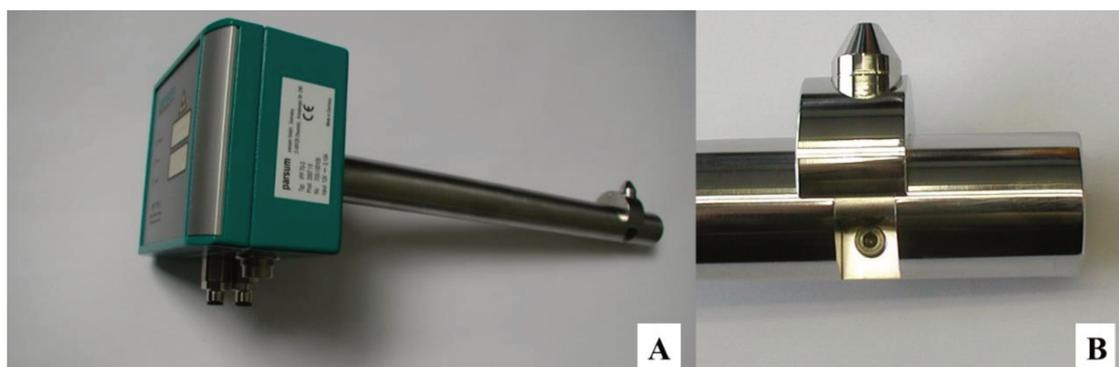


Figura 3.3: (A) Fotografia da sonda Parsum IPP70-S; (B) Dispersor D23.

### 3.3 CARACTERIZAÇÃO FÍSICO-QUÍMICA DOS SÓLIDOS PARTICULADOS

#### 3.3.1 Tamanho de partícula

O tamanho de partícula da goma arábica em pó obtida por *spray dryer*, matéria-prima deste estudo, foi determinado por meio da técnica de difração a laser. Essa mesma técnica foi utilizada para validação das medidas obtidas pelo monitoramento *in line* do tamanho de partícula, durante o processo de aglomeração, por meio da técnica de velocimetria de filtro

espacial (*Spatial Filter Velocimetry* – SFV). Os princípios da velocimetria de filtro espacial foram apresentados no item 3.2.2.

A técnica de difração a laser foi aplicada por meio do equipamento Mastersizer (Mastersizer 3000, Malvern Instruments, U.K), disponível no Laboratório de Recursos Analíticos e de Calibração (LRAC) da Faculdade de Engenharia Química da Unicamp. O Mastersizer 3000 é capaz de determinar tamanhos de partícula entre 0,1 e 1000  $\mu\text{m}$ . Além disso, as medidas podem ser tomadas a seco ou a úmido. No método a seco as partículas são dispersas no ar e no método a úmido é feita uma suspensão das partículas para que elas passem através do feixe de laser. Neste trabalho a matéria-prima foi submetida às duas metodologias a seco e a úmido e, para calibração da sonda, os aglomerados foram submetidos apenas ao método úmido. Na determinação de tamanho a úmido o meio de dispersão utilizado foi etanol 98,5%, por ser a goma arábica insolúvel nesse meio.

### **3.3.2 Densidade absoluta**

A densidade absoluta foi avaliada por picnometria a gás hélio em picnômetro (Micromeritics, modelo AccuPyc 1330) disponível no Laboratório de Recursos Analíticos e de Calibração (LRAC) da Faculdade de Engenharia Química da Unicamp.

### **3.3.3 Determinação da umidade**

Inicialmente a umidade foi determinada, em triplicata, em estufa a 105 °C por 24 horas. Os resultados obtidos foram utilizados para a calibração do analisador de umidade com aquecimento por lâmpada de halogênio (Metler Toledo, HR83 Halogen). Esse equipamento fornece o teor de água da amostra em poucos minutos por meio do princípio termogravimétrico. Nele um radiador de halogênio aquece a amostra e uma balança analítica integrada determina continuamente a perda de peso, interpretada como sendo apenas de água.

A calibração do analisador de umidade foi realizada por meio da determinação da umidade em cada um dos cinco critérios de desconexão (CD) pré-definidos no equipamento. O critério de desconexão é definido de acordo com a diminuição do peso por unidade de tempo ( $\Delta\text{g}/\Delta\text{s}$ ), se esta variação no peso for menor que o valor fixado para determinado período de acordo com o CD, o processo de secagem é interrompido, a medição é automaticamente encerrada e o resultado mostrado. Os valores pré-definidos são 1 mg por 10 s, 20 s, 50 s, 90 s e 120 s para os critérios CD 1, CD 2, CD 3, CD 4 e CD 5, respectivamente. Foram testadas cinco

temperaturas (90 °C, 105 °C, 120 °C, 135 °C e 150 °C), em triplicata. Em cada critério de desconexão foi utilizada uma amostra de aproximadamente 2 gramas de goma arábica em pó.

A umidade média para cada critério de desconexão e temperatura de aquecimento assim como a umidade obtida em estufa a 105 °C por 24 horas são mostrados na Figura 3.4

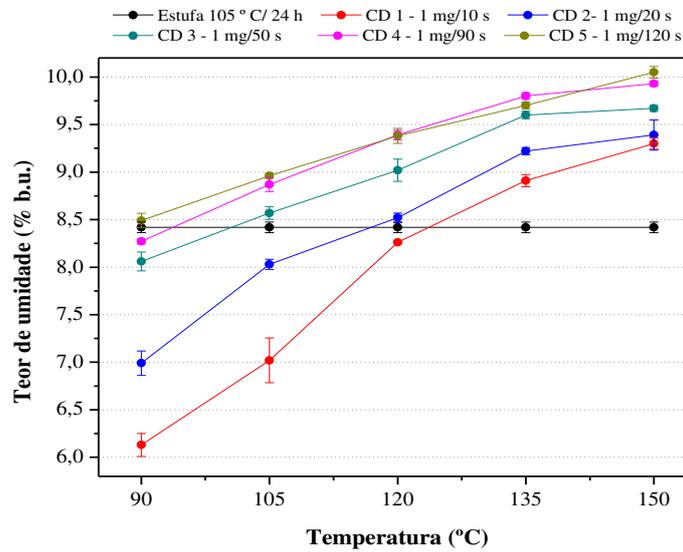


Figura 3.4: Calibração do analisador de umidade para goma arábica em pó.

A umidade medida pelo critério de desconexão 2 associado à temperatura de 120 °C,  $8,52 \pm 0,05\%$  (b.u.), foi a que mais se aproximou daquele medido em estufa,  $8,42 \pm 0,06$ . Essas condições foram utilizadas para a análise da umidade do material durante os ensaios de aglomeração de goma de arábica em leito fluidizado e do produto obtido.

### 3.3.4 Propriedade de Fluidez

A propriedade de fluidez da matéria-prima e dos aglomerados foi determinada de acordo com o índice de Carr ( $I_{Carr}$ ), Equação 2.2. Esse índice relaciona a densidade do leito de partículas ( $\rho_b$ ) e densidade do leito de partículas compactado ( $\rho_t$ ), conforme apresentado no item 2.4.2

A densidade do leito de partículas foi determinada tomando-se aproximadamente 20 mL de material em pó em uma proveta de 25 mL com massa conhecida. O conjunto (proveta + material em pó) foi pesado em balança analítica e a massa do material em pó obtida. A densidade do leito de partículas foi calculada pela razão entre a massa de material particulado e o volume ocupado por ele ( $\rho_b = m_{particulas} / v_{particulas}$ ). Este mesmo conjunto (proveta + material

em pó) foi utilizado para determinar a densidade do leito de partículas compactado. Para isso ele foi agitado, 1250 batidas no equipamento *Autotap Tap Density Analyzer* (Quantachrome instruments®, modelo DAT-4). O volume do material compactado foi lido e a densidade do leito compactado obtida pela razão entre a massa, mesma utilizada anteriormente, e o volume final, lido na proveta após o tempo de agitação ( $\rho_b = m_{partículas} / v_{partículas compactadas}$ ).

### 3.3.5 Tempo de instantaneização e capacidade de dispersão

O tempo de instantaneização foi determinado utilizando um dispositivo (Figura 3.5) semelhante àquele proposto por Hoge Kamp e Schubert (2003) e modificado por Dacanal (2005).

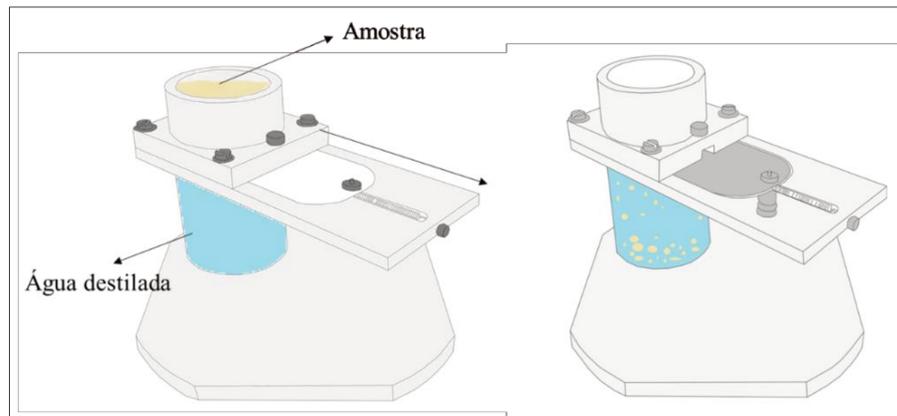


Figura 3.5: Esquema do dispositivo para determinação do tempo de instantaneização. Modificado de Dacanal (2009).

O dispositivo é basicamente um reservatório com capacidade para 70 mL, tampado com uma lâmina presa por um pino. Esse reservatório é preenchido com 70 mL de água destilada, à temperatura ambiente. Em seguida, a amostra (3 g) é uniformemente distribuída sobre a lâmina. O teste é iniciado quando o pino é acionado e a lâmina desloca-se fazendo com que a amostra de pó entre em contato com a água destilada. O teste finaliza quando ocorre a imersão completa da camada de partículas. O teste foi filmado com o auxílio de uma câmera digital e o tempo de instantaneização foi determinado através do processamento dos vídeos utilizando o software Windows Movie Maker (v 5.1, Microsoft).

Ensaios de capacidade de dispersão foram realizados com os produtos obtidos nas condições ótimas de aglomeração com soluções da própria goma e com soluções de inulina. Os ensaios foram realizados conforme descrito em Einhorn-Stoll e Kunzek (2009), três gramas de amostra foram distribuídos na superfície de 500 ml de água destilada sob agitação magnética

constante, à temperatura ambiente. Após 5 minutos, o líquido foi avaliado visualmente, colocando o béquer em um fundo escuro para observação da formação de grumos. Foi realizada uma avaliação visual qualitativa, verificando-se a dispersão e a formação de grumos no líquido.

### 3.3.6 Determinação da estabilidade da emulsão formada

A estabilidade das emulsões formadas tanto com a matéria-prima quanto com os produtos aglomerados, nas condições ótimas para os dois tipos de ligantes utilizados, foi determinada por meio de observação visual como descrito em McClements (2007). Este método é o mais simples e barato para analisar a estabilidade em emulsões e mede o índice de formação de creme, ou seja, de desprendimento de óleo.

Em emulsões do tipo óleo em água é possível distinguir visualmente duas ou três camadas, após a separação completa ou parcial das fases, conforme mostrado na Figura 3.6. Inicialmente todo o volume é composto pela emulsão,  $V_T$ . Uma camada chamada de “camada de soro” é formada no fundo do recipiente, com altura igual a  $V_S$ , outra “camada de creme”, rica em gotículas de óleo, é formada no topo do recipiente ( $V_C$ ) e, em alguns casos, é formada uma camada intermediária que separa as camadas de soro e creme e que será inicialmente semelhante à da emulsão original e, portanto, pode ser chamada de “camada de emulsão” ( $V_E$ ) (McClements, 2007).

Soluções com 1,0% de goma arábica foram preparadas com antecedência de 24 horas para o preparo das emulsões. As emulsões com 10,0% de óleo de soja foram feitas com adição de 10,0 g de óleo a 90,0 g da solução de goma arábica sob agitação. Posteriormente, o conjunto foi submetido a um gerador ultrassônico, método que vem sendo utilizado com sucesso para o preparo de emulsões (Chemat et al., 2011). O equipamento utilizado, ECO-SONICS (Ultronique, QR300, Brasil) possui frequência padrão de 20 kHz e é equipado com uma macro sonda de titânio de 13 mm de diâmetro. Foi utilizada a potência de 180 W, que equivale a 60,0% da potência máxima do equipamento, por 30 minutos.

As emulsões, inicialmente homogêneas, foram colocadas em uma proveta e mantidas em estufa a 25 °C por 7 dias. O volume das diferentes camadas formadas foi medido após este tempo e o índice de formação de creme (IC) foi determinado pela Equação 3.1. Onde  $V_S$  é o volume de soro formado e  $V_E$  é o volume de emulsão restante. Emulsões mais estáveis apresentam menor IC.

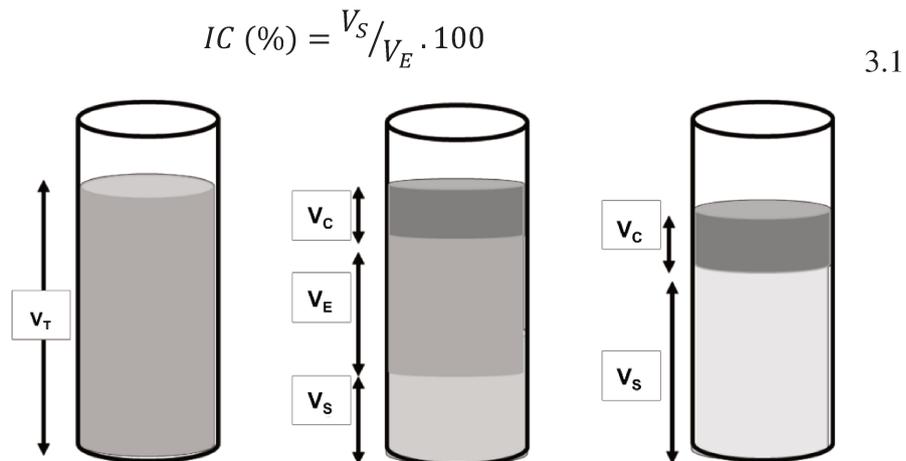


Figura 3.6: Distribuição vertical de camadas de uma emulsão de óleo em água que é instável para flotação: (I) sistema inicial (uma camada) ;(II) intermediário (três camadas), (III) sistema final (duas camadas).

Modificado de McClements (2007).

### 3.3.7 Quantificação de inulina

A análise para quantificação do teor de inulina foi realizada em alguns dos aglomerados, sendo eles, o aglomerado obtido quando a solução mais concentrada foi utilizada, o aglomerado que apresentou maior tamanho e o aglomerado obtido nas condições ótimas de processo. Essa quantificação foi realizada por meio de análise de Cromatografia Líquida de Alta Eficiência (CLAE) em cromatógrafo (Thermo Scientific, Dionex Ultimate 3000) com detector de índice de refração e injetor automático.

A metodologia para quantificação de inulina foi desenvolvida pelo Laboratório de Recursos Analíticos e de Calibração (LRAC) da Faculdade de Engenharia Química da Unicamp. Foram testadas duas fases móveis distintas, ácido sulfúrico e água purificada, sendo a água purificada testada em duas condições diferentes. A Tabela 3.3 apresenta as três condições testadas. Dentre as condições testadas, a condição 2 foi a que apresentou melhor resultado sendo então a condição utilizada neste estudo.

Tabela 3.3: Condições testadas para determinação do melhor método a ser utilizado para quantificação de inulina.

Condição	Coluna	Fase móvel	Concentração /Proporção	Q (mL/min)	V <sub>in</sub> (µL)	T <sub>am</sub> (°C)	T <sub>col</sub> (°C)	T <sub>det</sub> (°C)
1	Aminex HPX-87H	H <sub>2</sub> O	100%	0,5	20	15	65	35
2	Aminex HPX-87H	H <sub>2</sub> O	100%	0,5	20	15	20	35
3	Aminex HPX-87H	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	5mM	0,5	20	15	20	35

### 3.4 PREPARO E CARACTERIZAÇÃO DOS AGENTES LIGANTES

As soluções foram preparadas a partir da dissolução do material em água destilada à temperatura ambiente, sob forte agitação mecânica, até a completa solubilização do produto. O tempo de agitação mecânica variou de acordo com a concentração final da solução. As soluções foram preparadas pelo menos um dia antes da utilização e mantidas durante a noite à temperatura ambiente para completa hidratação das moléculas do polímero. As concentrações utilizadas foram 0,7%, 5,6%, 12,8%, 20,0% e 24,9% (m/m) para as soluções de goma arábica e 1,9%, 6,0%, 12,0%, 18,0% e 22,1% (m/m) para as soluções de inulina.

As soluções de goma arábica, previamente preparadas, foram armazenadas por, no máximo, 4 dias sob refrigeração e as de inulina por, no máximo 4 dias, à temperatura ambiente.

#### 3.4.1 Sólidos totais

O teor de sólidos totais foi determinado, em triplicata, por meio de secagem direta em estufa a 105 °C, de acordo com metodologia da AOAC (1995).

#### 3.4.2 Massa específica

A massa específica dos agentes ligantes foi obtida por picnometria líquida a temperatura ambiente, conforme a norma analítica n° 011/IV do Instituto Adolfo Lutz (2008). Foi utilizado picnômetro de vidro de 25 mL previamente calibrado e os ensaios foram realizados em triplicata.

#### 3.4.3 Tensão superficial

A medida da tensão superficial dos agentes ligantes foi realizada em tensiômetro automático (KSB Instruments®, Du Noüy – Sigma 701). Foi empregado o método de placa de

Wilhelmy (Pallas e Pethica, 1983). A placa plana utilizada possui 19,6 mm de comprimento, 0,1 mm de espessura e é dotada de micro rugosidades. A tensão superficial foi determinada a partir da média aritmética de 20 medidas sucessivas para cada agente ligante.

#### 3.4.4 Ângulo de contato

As medidas dos ângulos de contato foram realizadas utilizando um goniômetro (Tantec Contact Angle Meter, USA). Uma gota da solução ligante foi depositada sobre a superfície de uma lâmina contendo o material sólido (goma arábica) e sua sombra projetada em um plano graduado, por meio do qual mediu-se o ângulo de contato.

#### 3.4.5 Reologia

O comportamento reológico das soluções de goma arábica e das soluções de inulina foi determinado à temperatura de 25 °C. Foi utilizado um reômetro rotacional de deformação controlada (Thermo Scientific™, HAAKE MARS III) e o software *Reowin Job* para realizar os testes reológicos. A temperatura foi mantida a 25 °C por um banho termostático. O sensor utilizado foi do tipo com geometria cone-placa de aço inoxidável de 60 mm de diâmetro (1°).

De acordo com os resultados obtidos, as curvas foram ajustadas à lei da potência, modelo de Ostwald de Waele (Equação 3.2) ou ao modelo de Herschel-Bulkley que representa um fluido que segue a lei da potência com tensão residual (Equação 3.3).

$$\sigma = k\dot{\gamma}^n \quad 3.2$$

$$\sigma = \sigma_0 + k\dot{\gamma}^n \quad 3.3$$

Em que,  $\sigma$  é a tensão de cisalhamento (Pa),  $\sigma_0$  é a tensão residual (Pa),  $k$  é o índice de consistência (Pa.s<sup>*n*</sup>),  $\dot{\gamma}$  é a taxa de deformação (s<sup>-1</sup>) e  $n$  o índice de comportamento (adimensional).

### 3.5 ESTUDO FLUIDODINÂMICO

Os primeiros ensaios realizados com a goma arábica no leito que foi utilizado para a aglomeração, foram os ensaios fluidodinâmicos a seco, ou seja, sem a aspersão de ligantes. Esses ensaios foram realizados para a determinação da velocidade de mínima fluidização ( $u_{mf}$ ) e, assim, a mínima velocidade de processo ( $u_{pr}$ ). Os ensaios consistiram na obtenção de curvas de queda de pressão em função da velocidade do ar, uma vez que na transição do leito fixo para

leito com movimentação de partículas (fluidizado) ocorre uma mudança no comportamento da queda de pressão.

A princípio foi observado o comportamento das partículas para uma massa inicial de 0,50 kg e 0,40 kg. Decidiu-se por trabalhar com 0,40 kg, pois a fluidização e a movimentação das partículas foi mais uniforme com esta massa. Essa quantidade de material preencheu apenas a parte cônica do leito, quando em leito fixo.

Para a construção da curva fluidodinâmica, a princípio foi observada a queda de pressão em função da velocidade do ar para o leito sem material (branco), isso para determinar a queda de pressão em decorrência dos elementos do sistema. Os dados obtidos foram ajustados em um polinômio ( $\Delta P \cdot u$ ). Em seguida registrou-se a queda de pressão em função da velocidade do ar para o leito com material. O polinômio, previamente ajustado, foi utilizado para o cálculo da queda de pressão provocada pelos elementos do sistema ( $\Delta P$  real do branco) para as velocidades registradas com o sistema carregado. A queda de pressão real para o sistema com material foi calculada pela diferença entre a queda pressão registrada no ensaio com o sistema carregado e a queda pressão real do branco. Assim, os valores obtidos de queda de pressão real no sistema em função da velocidade do ar, foram utilizados para a construção da curva fluidodinâmica.

### **3.6 ENSAIOS PRELIMINARES**

Ensaio preliminares foram realizados para analisar a viabilidade do processo de aglomeração de goma arábica em leito fluidizado e o comportamento do sistema durante o processo. No primeiro momento, observou-se a estabilidade do sistema, o rendimento do processo e a umidade do produto em função dos parâmetros experimentais. A observação do comportamento do sistema de acordo com as condições estabelecidas também foi necessária para escolha das melhores condições para realização dos ensaios de validação das medidas de tamanho realizadas pela sonda Parsum.

Durante os ensaios preliminares foram testadas condições extremas com altas vazões de aspersão de água e baixas temperaturas do ar para estabelecer qual o limite poderia ser utilizado. Nestes ensaios, alguns parâmetros foram mantidos fixos. A Tabela 3.4 apresenta esses parâmetros e os seus respectivos valores.

Tabela 3.4: Parâmetros mantidos fixos e seus respectivos valores para os ensaios preliminares de aglomeração de goma arábica.

<b>Parâmetro</b>	<b>Nível</b>
Massa inicial de material (kg)	0,40
Velocidade do ar (m/s)	0,26
Volume de ligante (mL)	60

A massa inicial de goma arábica foi escolhida com base nos ensaios fluidodinâmicos iniciais e em trabalhos previamente realizados no mesmo equipamento como o de Andreola (2017). A velocidade do ar de fluidização, a pressão e temperatura ambiente, utilizada nos ensaios de aglomeração, velocidade de processo, foi determinada de acordo com os ensaios fluidodinâmicos e correspondeu a 1,5 vezes a velocidade de mínima fluidização total ( $u_{mft}$ ). Para esse valor de velocidade a fluidização das partículas foi mantida após o início da atomização de ligante. O volume de ligante adicionado também foi em decorrência da observação realizada em testes iniciais de modo a evitar excessivo umedecimento das partículas e conseqüente defluidização do leito.

Os valores utilizados para temperatura do ar ( $T_{ar}$ ), vazão de ligante ( $Q_{lig}$ ), altura do bico de atomização ( $H_b$ ) e pressão relativa de atomização ( $P_{atz}$ ) são apresentados na Tabela 3.5. Os valores a serem testados inicialmente foram definidos com base em trabalhos semelhantes de aglomeração de pós alimentícios (Dacanal, 2009; Hirata, 2015 e Andreola, 2017)

Tabela 3.5: Condições testadas nos ensaios preliminares de aglomeração.

<b>Ensaio</b>	<b><math>T_{ar}</math> (°C)</b>	<b><math>Q_{lig}</math> (ml/min)</b>	<b><math>H_b</math> (m)</b>	<b><math>P_{atz}</math> (bar)</b>
1	55	4,0	0,30	1,4
2	55	3,2	0,30	1,4
3	60	2,8	0,35	1,4
4	60	2,0	0,35	1,4
5	65	2,0	0,35	1,4
6	65	2,0	0,35	0,5
7	75	2,0	0,35	0,5

### 3.7 ENSAIOS DE AGLOMERAÇÃO COM ÁGUA COMO LIGANTE

Os ensaios preliminares mostraram a viabilidade de aglomeração de goma arábica utilizando água como ligante. Então, após definidos os melhores parâmetros de trabalho, realizou-se um planejamento experimental do tipo delineamento composto central rotacional (DCCR) 2<sup>2</sup> utilizando água como ligante.

O planejamento teve o objetivo de analisar a influência da vazão de ligante e da temperatura do ar na cinética de aglomeração de goma arábica com base em medidas *in-line* do tamanho da partícula por meio da sonda Parsum. E, também, foi fonte de informações para realizar um estudo da influência das características da solução ligante na cinética de aglomeração de goma arábica, uma vez que os próximos passos foram a aglomeração de goma arábica utilizando soluções da própria goma e soluções de inulina como ligantes.

No planejamento foram mantidos fixos a massa inicial de matéria-prima, a velocidade inicial do ar de fluidização e o volume de ligante adicionado. Os seus valores são mostrados na Tabela 3.6. Optou-se por aumentar o volume de ligante em relação aos ensaios preliminares, uma vez que a fluidização com esse volume maior foi possível e com a intenção de obter um produto com maior tamanho. Em alguns dos ensaios desse planejamento foi realizada secagem do material aglomerado, no próprio leite, com o objetivo de que a sua  $X_{b,u}$  final ficasse abaixo de 8,00%. A Tabela 3.7 apresenta os níveis de cada um dos parâmetros operacionais estudados nesse planejamento DCCR 2<sup>2</sup>. As variáveis resposta analisadas foram o tamanho médio final das partículas ( $D_{50v}$ ) e o rendimento do processo ( $\eta$ ). A análise dos efeitos das variáveis independentes sobre as respostas foi realizada com auxílio do software Statistica® 10.0, considerando nível de confiança de 90,0%.

Tabela 3.6: Parâmetros mantidos fixos e seus respectivos valores no planejamento DCCR 2<sup>2</sup> utilizando água como ligante.

Parâmetro	Nível
Massa inicial de material (kg)	0,40
Velocidade do ar (m/s)	0,24
Volume de ligante (mL)	80

Tabela 3.7: Parâmetros operacionais e seus níveis para o planejamento DCCR 2<sup>2</sup> de aglomeração utilizando água como ligante.

Parâmetros	Níveis				
	-1,4	-1	0	+1	+1,4
Q <sub>lig</sub> (mL/min)	1,2	1,5	2,3	3,0	3,4
T <sub>ar</sub> (°C)	60,9	65	75	85	89,1

### 3.8 ENSAIOS DE AGLOMERAÇÃO COM SOLUÇÕES DE GOMA ARÁBICA E DE INULINA

Ensaio de aglomeração de goma arábica em pó utilizando soluções com diferentes concentrações de goma arábica e inulina foram realizados com os seguintes objetivos: analisar a influência da vazão de ligante, da temperatura do ar e da concentração da solução ligante na cinética de aglomeração e nas características do produto final e analisar a viabilidade de incorporação de inulina à goma arábica em pó.

Os ensaios foram realizados de acordo com um delineamento composto central rotacional (DCCR) 2<sup>3</sup> em que variaram a vazão de ligante (Q<sub>lig</sub>), a temperatura do ar (T<sub>ar</sub>) e a composição da solução ligante (C<sub>lig</sub>), conforme apresentado na Tabela 3.8. Os parâmetros mantidos fixos foram os mesmos utilizados durante o processo de aglomeração com água, conforme Tabela 3.6, com exceção do volume de ligante que nestes ensaios foi igual a 100 mL. As variáveis resposta analisadas, assim como na aglomeração utilizando água como ligante, foram o tamanho médio final das partículas (D<sub>50v</sub>) e o rendimento do processo ( $\eta$ ).

Assim como para o planejamento com água, a análise dos efeitos das variáveis independentes sobre as respostas foi realizada com auxílio do software Statistica® 10.0, considerando nível de confiança de 90,0%.

Tabela 3.8: Variáveis operacionais e níveis do DCCR 2<sup>3</sup> utilizando soluções de goma arábica e de inulina como ligantes.

Solução ligante	Parâmetros	Níveis				
		-1,68	-1	0	+1	+1,68
Goma arábica	$Q_{lig}$ (mL/min)	1,0	1,5	2,3	3,0	3,6
	$T_{ar}$ (°C)	58	65	75	85	92
	$C_{lig}$ (%)	0,7	5,6	12,8	20,0	24,9
Inulina	$Q_{lig}$ (mL/min)	1,0	1,5	2,3	3,0	3,6
	$T_{ar}$ (°C)	58	65	75	85	92
	$C_{lig}$ (%)	1,9	6,0	12,0	18,0	22,1

### 3.9 RENDIMENTO DO PROCESSO

A influência dos parâmetros operacionais no rendimento do processo ( $\eta$ ) também foi analisada. O rendimento foi definido como sendo a razão entre a massa de material aglomerado ( $m_f$ ) e a massa inicial de material adicionado ao leito ( $m_i$ ), incluindo a massa de ligante. A massa de material aglomerado foi determinada de acordo com a massa remanescente no leito ao final dos ensaios, descontando-se a massa de torrões formados ( $m_{torrões}$ ). Foram considerados torrões os aglomerados maiores que 850  $\mu\text{m}$ . Além da formação de torrões, o arraste de material para o ciclone e incrustações na parede do leito também ocasionaram perdas. Desta forma, a  $m_f$  é representada pela diferença entre a  $m_i$  e as massas de torrões ( $m_{torrões}$ ), de material arrastado para o ciclone ( $m_{arraste}$ ) e de material perdido por das incrustações na parede do leito ( $m_{inc}$ ). O rendimento do processo foi, então, determinado de acordo com a Equação 3.4.

$$\eta = \frac{m_f}{m_i} = \frac{m_i - (m_{elut} + m_{inc} + m_{torrões})}{m_i} \quad 3.4$$

## 4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo são apresentados e discutidos os resultados obtidos nos ensaios experimentais realizados. Os primeiros resultados apresentados são os de caracterização tanto da matéria-prima como dos agentes ligantes. Em seguida são apresentados os resultados dos ensaios fluidodinâmicos, ensaios preliminares e ensaios de validação das medições da sonda Parsum. Por fim, são apresentados os resultados dos ensaios de aglomeração com os dois tipos de ligantes. A caracterização dos produtos aglomerados é feita ao final da apresentação dos resultados obtidos em cada um dos planejamentos experimentais de aglomeração.

### 4.1 CARACTERIZAÇÃO FÍSICO-QUÍMICA DA MATÉRIA-PRIMA

A goma arábica em pó, utilizada como matéria-prima, apresentou umidade igual a  $8,52 \pm 0,05\%$  (b.u.) para as condições de operação do analisador de umidade escolhidas, ou seja, critério de desconexão 2 e temperatura igual a  $120\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

O diâmetro médio e a distribuição do tamanho das partículas da matéria-prima, determinados em duplicata por difração a laser a seco, no equipamento Mastersizer (Malvern Instruments, MAZ3000) são apresentados na Figura 4.1. As partículas apresentaram ampla distribuição de tamanho monomodal com tamanhos que variam de, aproximadamente,  $5\text{ }\mu\text{m}$  a  $400\text{ }\mu\text{m}$ . Os diâmetros característicos foram  $D_{10}$  igual a  $21,9 \pm 0,2\text{ }\mu\text{m}$ ,  $D_{50}$  igual a  $65,2 \pm 1,0\text{ }\mu\text{m}$  e  $D_{90}$  igual a  $143,6 \pm 2,0\text{ }\mu\text{m}$ , o que caracteriza o material como pó muito fino.

A densidade absoluta da goma arábica em pó determinada foi  $1,3878 \pm 0,0015\text{ (g/cm}^3\text{)}$  e a densidade bulk foi  $0,4260 \pm 0,0098\text{ (g/cm}^3\text{)}$ . Sendo assim, o comportamento fluidodinâmico da goma arábica é teoricamente classificado como grupo A de Geldart. Esse grupo de partículas expande-se com velocidades pouco acima da velocidade de mínima fluidização e, com o aumento da velocidade, apresentam fluidização borbulhante (Kunii e Levenspiel, 1991).

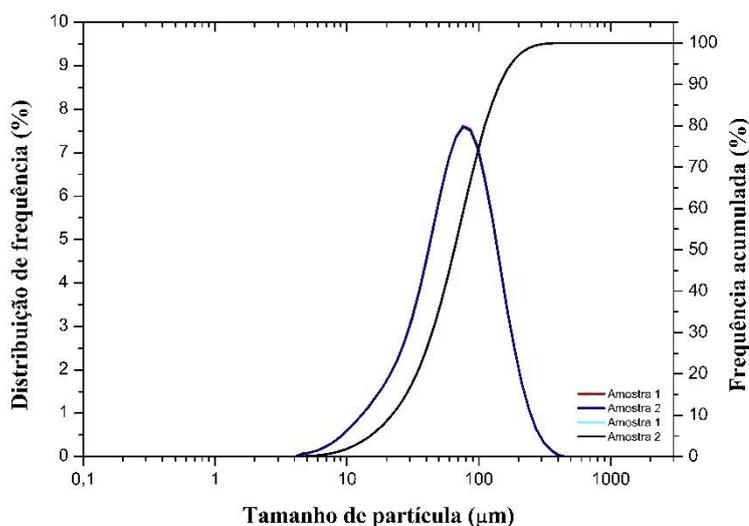


Figura 4.1: Curvas das distribuições de frequência e cumulativa (base volumétrica) obtidas por difração a laser para a matéria-prima.

## 4.2 CARACTERIZAÇÃO DOS AGENTES LIGANTES

Os agentes ligantes foram caracterizados conforme descrito no item 3.4. A Tabela 4.1 apresenta o teor de sólidos totais e a massa específica para as soluções de diferentes concentrações de goma arábica e inulina.

O teor de sólidos aumentou com o aumento da concentração tanto para as soluções de goma arábica como para as soluções de inulina. As soluções de goma arábica apresentaram maior diferença entre a concentração e o teor de sólidos do que as soluções de inulina, o que pode ser atribuído a maior umidade da goma arábica em pó. A massa específica das soluções ligantes também variou com a variação da concentração. Soluções com maiores concentrações apresentaram maiores valores de massa específica. Hirata (2015) estudou soluções de goma arábica nas concentrações de 5,0%, 10,0%, 15,0%, 20,0% e 25,0% (m/m) e observou o mesmo comportamento para a massa específica.

Tabela 4.1: Características físico-químicas dos agentes ligantes.

Ligante	Concentração (% (m/m))	Sólidos totais (%)	Massa específica (g/cm <sup>3</sup> )
GA	0,7	0,64 ± 0,02	1,0021 ± 0,0057
	5,6	5,17 ± 0,01	1,0183 ± 0,0001
	12,8	11,76 ± 0,01	1,0484 ± 0,0006
	20,0	18,24 ± 0,02	1,0781 ± 0,0005
	24,9	22,66 ± 0,01	1,1001 ± 0,0004
IN	1,9	1,83 ± 0,01	1,0031 ± 0,0001
	6,0	5,83 ± 0,03	1,0189 ± 0,0002
	12,0	11,52 ± 0,01	1,0418 ± 0,0001
	18,0	17,23 ± 0,02	1,0659 ± 0,0001
	22,1	21,15 ± 0,02	1,0831 ± 0,0001

GA: Goma arábica; IN: Inulina.

A tensão superficial em função da concentração das soluções de goma arábica e inulina é mostrada na Tabela 4.2. O comportamento observado para os dois tipos de solução foi distinto. A tensão superficial para as soluções de goma arábica diminuiu com o aumento da concentração. Para as soluções de inulina, inicialmente, com o aumento da concentração entre 1,9% e 12,0%, também ocorreu diminuição da tensão superficial. Entretanto, quando a concentração aumentou de 12,0% para 18,0% a tensão superficial aumentou e de 18,0% para 20,0% manteve-se praticamente constante e as suas médias não apresentaram diferença significativa com intervalo de confiança de 95,0%, pelo teste de Tukey.

Tabela 4.2: Tensão superficial para as soluções de goma arábica e inulina em diferentes concentrações.

Goma arábica		Inulina	
Concentração % (m/m)	$\gamma$ (mN/m)	Concentração % (m/m)	$\gamma$ (mN/m)
0,7	55,56 ± 0,98 <sup>a</sup>	1,9	65,90 ± 0,13 <sup>a</sup>
5,6	53,40 ± 0,58 <sup>b</sup>	6,0	64,38 ± 0,29 <sup>b</sup>
12,8	48,95 ± 0,59 <sup>c</sup>	12,0	59,79 ± 0,42 <sup>c</sup>
20,0	47,78 ± 0,66 <sup>d</sup>	18,0	62,65 ± 0,13 <sup>d</sup>
24,9	44,54 ± 0,31 <sup>e</sup>	22,1	62,35 ± 0,59 <sup>d</sup>

Os resultados para tensão superficial de soluções de goma arábica foram ligeiramente superiores àqueles encontrados por Hirata (2015), o que pode estar relacionado com a variabilidade de características da goma arábica de acordo com a região e época.

O ângulo de contato entre a goma arábica em pó e as soluções ligantes foi medido para determinar a molhabilidade do material a ser aglomerado pelas soluções ligantes. Durante os ensaios para determinação do ângulo de contato entre as soluções e a goma arábica em pó, a gota foi rapidamente absorvida pelo material impossibilitando a determinação do ângulo de contato a olho nu. Assim, repetiu-se os ensaios tomando as imagens com o auxílio de uma câmera digital. Os vídeos foram analisados com o auxílio do *software* Windows Movie Maker (v 5.1, Microsoft) sendo possível medir o ângulo de contato no momento em que a gota tocou o material.

Os valores de ângulo de contato obtidos para as soluções em suas diferentes concentrações são apresentados na Tabela 4.3. Os valores apresentados foram os medidos no tempo 0 s, ou seja, assim que a gota entrou em contato com o material. As soluções de goma arábica apresentaram ângulo de contato crescente à medida que a concentração aumentou. Resultado semelhante foi observado por Hirata (2015) para o ângulo de contato entre soluções de goma arábica e pectina em pó. No entanto, a gota espalhou-se completamente em menos de 3 s para todas as concentrações. As soluções de inulina espalharam-se por completo ao tocar a superfície de goma arábica, resultados indicam molhabilidade completa do material pelas soluções (De Gennes, 1985 e Beatty e Smith, 2010).

Tabela 4.3: Ângulo de contato ( $\theta$ ) entre a superfície de goma arábica e as soluções ligantes.

<b>Goma arábica</b>		<b>Inulina</b>	
<b>Concentração % (m/m)</b>	<b><math>\theta</math> (°)</b>	<b>Concentração % (m/m)</b>	<b><math>\theta</math> (°)</b>
0,7	0	1,9	0
5,6	23 ± 2	6,0	0
12,8	46 ± 4	12,0	0
20,0	57 ± 2	18,0	0
24,9	75 ± 4	22,1	0

O comportamento reológico para as diferentes concentrações de soluções de goma arábica é apresentado na Figura 4.2. A viscosidade aparente das soluções aumentou com o aumento da concentração, mas esse aumento não ocorreu de maneira linear e sim exponencial,

sendo mais pronunciado a partir da concentração igual a 12,8% (mm). Pela análise do comportamento da viscosidade aparente em função da taxa de deformação as soluções de goma arábica, a partir da concentração 5,6 %, apresentaram comportamento de fluido pseudoplástico para baixas taxas de deformação, ou seja, redução da viscosidade aparente em função da taxa de deformação. Contudo, à medida que a taxa de deformação aumentou, a viscosidade aparente, para todas as concentrações, manteve-se constante. O mesmo comportamento foi observado por estudos anteriores (Mothe e Rao, 1999; Li et al., 2009 e Hirata, 2015).

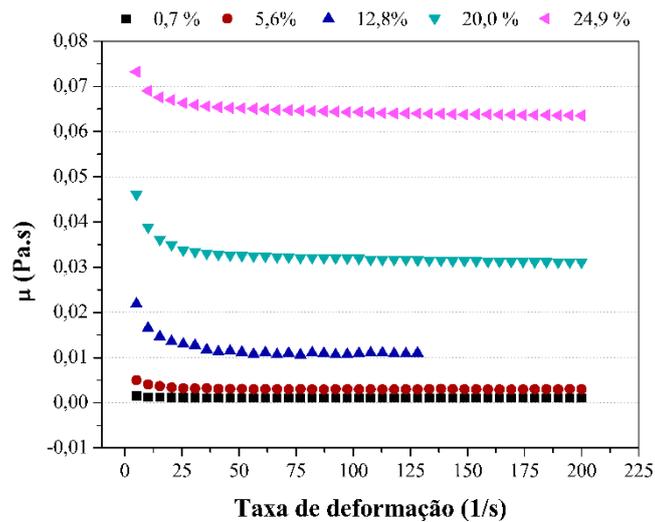


Figura 4.2: Viscosidade aparente em função da taxa de deformação para as soluções de goma arábica à temperatura de 25°C.

O modelo que melhor se ajustou aos dados experimentais para as soluções de goma arábica foi o modelo de Herschel-Bulkley e os seus parâmetros tensão residual ( $\sigma_0$ ), índice de comportamento ( $n$ ) e índice de consistência ( $k$ ) são apresentados na Tabela 4.4. Esse modelo descreve bem o comportamento de fluidos que apresentam tensão residual e para os quais a viscosidade diminui com o aumento da taxa de deformação, fluidos pseudoplásticos (Sisko, 1958; Maegava, 1986). O índice de consistência apresentou expressivo aumento com o aumento da concentração da solução indicando que soluções mais concentradas apresentam maior resistência ao escoamento. Na Tabela 4.4, também é apresentada a viscosidade aparente em função da concentração, que foi calculada como a média dos valores obtidos a partir da taxa de deformação igual a  $100 \text{ s}^{-1}$ , ponto a partir do qual ela apresentou-se praticamente constante.

Tabela 4.4: Parâmetros do modelo de Herschel-Bulkley e viscosidade aparente em função da concentração de goma arábica.

Concentração (%)	$\sigma_0$ (mPa)	k (mPa.s <sup>n</sup> )	n	r <sup>2</sup>	$\eta$ (mPa.s)
0,7	2,4 ± 0,6	1,0 ± 0,0 <sup>1</sup>	1,02 ± 0,01	1,000	1,1 ± 0,0 <sup>2</sup>
5,6	23,3 ± 4,8	1,3 ± 0,2	1,04 ± 0,03	0,998	2,9 ± 0,1
12,8	31,5 ± 5,2	9,1 ± 0,5	1,02 ± 0,01	1,000	10,4 ± 0,0
20,0	61,6 ± 12,3	39,6 ± 1,1	0,95 ± 0,00	1,000	31,2 ± 0,4
24,9	25,2 ± 7,3	68,0 ± 0,5	0,98 ± 0,00	1,000	65,0 ± 0,2

\*<sup>1</sup>0,04; <sup>2</sup>0,01

Vale ressaltar que as soluções de goma arábica foram utilizadas à temperatura ambiente e a temperatura no interior do leito variou de acordo com as condições experimentais. De todo modo, estudos relatam que a viscosidade de soluções de goma arábica sofre uma pequena redução com o aumento da temperatura, mas esse comportamento é independente da concentração utilizada (Gomez-Diaz et al., 2008).

O comportamento reológico para as diferentes concentrações de soluções de inulina é apresentado na Figura 4.3. Diferentemente do que foi observado para as soluções de goma arábica, apesar de haver um aumento na viscosidade aparente com o aumento da concentração, essa variação foi muito pequena. Além disso, assim como observado para as soluções de goma arábica, para baixas taxas de deformação, as soluções apresentaram comportamento pseudoplástico. Todavia, esse desvio do comportamento newtoniano foi menor do que aquele apresentado pelas soluções de goma arábica e muito similar para as diferentes concentrações de soluções de inulina.

O modelo que melhor se ajustou aos dados experimentais para as soluções de inulina foi o de Ostwald de Waele, que descreve muito bem os fluidos pseudoplásticos. Os parâmetros índice de comportamento (n) e índice de consistência (k) foram calculados e são apresentados na Tabela 4.5. O índice de consistência (k) indica que com o aumento da concentração ocorre um aumento da viscosidade do fluido, mas em menor proporção do que aquele observado para as soluções de goma arábica (Tabela 4.4). Leite (2001) também observou comportamento não newtoniano pseudoplástico para soluções de inulina extraída de chicória. Na Tabela 4.5 também é apresentada a viscosidade aparente em função da concentração, que

foi calculada como a média dos valores da taxa de deformação acima de  $8,80 \text{ s}^{-1}$ , ponto a partir do qual a ela apresentou-se praticamente constante.

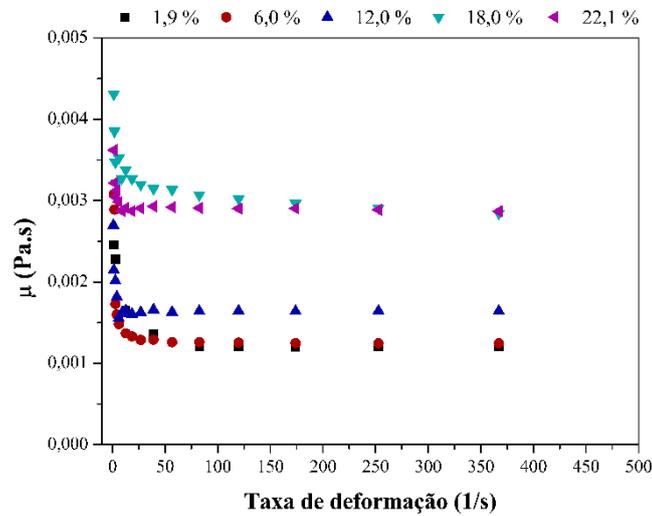


Figura 4.3: Viscosidade aparente em função da taxa de deformação para as soluções de inulina à temperatura de  $25^{\circ}\text{C}$ .

Assim como as soluções de goma arábica, as soluções de inulina foram utilizadas a temperatura ambiente e foram sujeitas a diferentes temperaturas no interior do leito de acordo com as condições experimentais. Alguns estudos relatam que a viscosidade das soluções de inulina aumenta quando a temperatura é aumentada entre  $25$  e  $53^{\circ}\text{C}$  e a partir de  $53^{\circ}\text{C}$  a viscosidade diminuiu com o aumento da temperatura (Leite, 2001 e Toneli, 2006). No entanto, nesses estudos não foi mostrada interdependência entre o efeito da variação da temperatura e da variação da concentração.

Tabela 4.5: Parâmetros do modelo de Ostwald de Waele e viscosidade aparente em função da concentração de inulina.

Concentração (%)	$k$ (mPa.s <sup>n</sup> )	$n$	$r^2$	$\eta$ (mPa.s)
1,9	$0,8 \pm 0,2$	$1,03 \pm 0,01$	0,998	$1,3 \pm 0,2$
6,0	$0,9 \pm 0,1$	$1,02 \pm 0,01$	0,999	$1,3 \pm 0,0^1$
12,0	$1,9 \pm 0,3$	$0,98 \pm 0,01$	1,000	$1,6 \pm 0,0^2$
18,0	$4,0 \pm 0,3$	$0,95 \pm 0,03$	1,000	$2,9 \pm 0,3$
22,1	$3,2 \pm 0,4$	$0,98 \pm 0,01$	1,000	$2,9 \pm 0,1$

\*<sup>1</sup>0,04; <sup>2</sup>0,02

### 4.3 COMPORTAMENTO FLUIDODINÂMICO

O estudo fluidodinâmico foi realizado com o objetivo de determinar a velocidade de processo para a aglomeração de goma arábica em pó. A velocidade de processo determinada visa garantir a movimentação adequada das partículas durante a aglomeração, quando ocorre umedecimento e alteração no tamanho e na distribuição de tamanho das partículas. A curva fluidodinâmica, que apresenta a queda de pressão em função das velocidades crescente e decrescente, para 0,40 kg de goma arábica em pó à temperatura ambiente é mostrada na Figura 4.4. A curva fluidodinâmica obtida é semelhante às curvas apresentadas por Peng e Fan (1997) e Sau et al. (2007).

A curva apresentada na Figura 4.4 também se assemelha à curva característica de jorro rápido. Porém, pela observação visual, constatou-se a formação de bolhas e a ausência de movimento cíclico bem definido, além disso, não se verificou jorro (jato central), o que afasta o comportamento estudado de um leito de jorro rápido típico, conforme Markowski e Kaminski (1983), e o aproxima do comportamento apresentado em leitos fluidizados cônicos de acordo com Schaafsma et al. (2006). Diante desse comportamento fluidodinâmico buscou-se determinar a velocidade de mínima fluidização total.

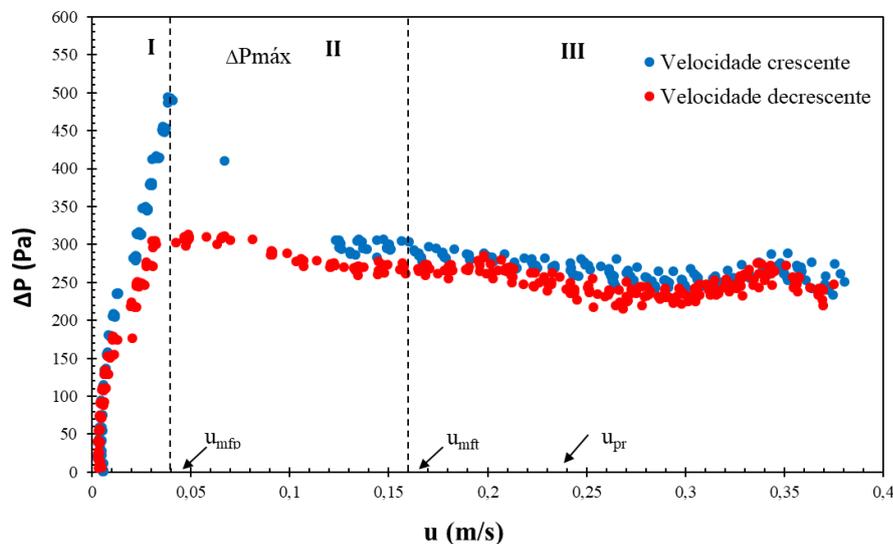


Figura 4.4: Curva fluidodinâmica para 0,40 kg de goma arábica em pó.

A velocidade de mínima fluidização para leito cilíndrico e partículas com distribuição de tamanho uniforme é classicamente determinada pela interseção entre as linhas extrapoladas correspondentes à queda de pressão no leito fixo e à queda de pressão no leito

fluidizado para a velocidade decrescente. Todavia, optou-se por não utilizar essa técnica para determinar a  $u_{mft}$  para a goma arábica em pó, visto que a queda de pressão em função da velocidade decrescente do ar para o leito fixo não apresentou comportamento linear, o que pode estar relacionado à ampla distribuição de tamanho de partículas e à presença de partículas muito pequenas. Comportamento semelhante e mais acentuado foi observado por Andreola (2017) para o comportamento fluidodinâmico de proteína de arroz.

Durante os ensaios fluidodinâmicos ocorreu arraste de aproximadamente 7,0% do material, apesar dos ensaios terem sido realizados de modo que a velocidade máxima utilizada minimizasse a perda de material por arraste. Em decorrência disso, a distribuição de tamanho de partículas foi alterada da situação de velocidade do ar crescente para velocidade do ar decrescente. Portanto, a curva para velocidade do ar crescente foi tomada como mais representativa da matéria-prima a ser utilizada nos ensaios de aglomeração. Isto é, as velocidades características para o estudo em questão foram determinadas com base nos dados apresentados na Figura 4.4 e em observações visuais, para o sistema em velocidade crescente.

Foram observados e identificados na Figura 4.4 três regimes de fluidização distintos. Para valores de velocidade superficial do ar baixos, até aproximadamente 0,04 m/s, observou-se o regime I, leito fixo, em que a altura do leito se manteve constante ( $H_{est} = 0,095$  m) e a queda de pressão aumentou linearmente com o aumento da velocidade do ar até atingir o  $\Delta P_{máx}$ . A partir da velocidade do ar em torno de 0,04 m/s, com um pequeno aumento da velocidade do ar, a movimentação parcial das partículas e a elevação da altura do material na região central foram percebidas imediatamente, ou seja, foi observada a fluidização parcial do leito, regime II. Essa velocidade foi, então, definida como a velocidade de mínima fluidização parcial ( $u_{mfp}$ ). Entretanto, as partículas próximas à parede do leito começaram a movimentar-se somente após alguns sucessivos aumentos da velocidade do ar, quando essa atingiu aproximadamente 0,16 m/s. Com o aumento da velocidade do ar acima de 0,16 m/s, foi observado o surgimento de bolhas e ausência de distinção entre os movimentos ascendentes e descendentes sendo o leito considerado em fluidização total, regime III. A velocidade de 0,16 m/s foi tomada como sendo a velocidade de mínima fluidização total ( $u_{mft}$ ). Nesse regime a queda de pressão manteve-se praticamente constante com o aumento da velocidade do ar.

Com a determinação da  $u_{mft}$  foi estabelecida velocidade de processo igual a 0,24 m/s, ou seja,  $1,5 u_{mft}$ , de modo a garantir uma movimentação completa das partículas durante todo processo de aglomeração.

#### 4.4 ENSAIOS PRELIMINARES

Os ensaios preliminares foram realizados conforme descrito no item 3.6 e na Tabela 3.4. Durante os ensaios de 1, 2, 3 e 4 houve o excessivo umedecimento do material e a formação de um grande aglomerado de goma, sendo necessário interromper o processo em poucos minutos. Nas condições do ensaio 5 foi possível a conclusão do ensaio, mas o rendimento do processo foi muito baixo, 38,5%. O ensaio 6 também foi concluído e apresentou bom rendimento, 75,5%, mas julgou-se que a qualidade da movimentação do material no leito, analisada visualmente, deveria ser melhor. O ensaio 7 foi realizado em busca de uma melhor qualidade de fluidização, o que de fato foi observada. Esse ensaio foi realizado em duplicata conseguindo-se bom rendimento de processo, 70,0% e 73,0%.

As condições do ensaio preliminar 7 foram utilizadas para calibração das medidas tomadas por VFE. Esses ensaios preliminares também serviram de base para determinação do limite mínimo de temperatura e limite máximo de vazão de ligante que foram utilizados nos planejamentos subsequentes para o estudo da aglomeração de goma arábica.

#### 4.5 ANÁLISE DAS MEDIDAS TOMADAS PELA SONDA PARSUM

##### 4.5.1 Comparação entre o método *off-line* e o método *in-line* de determinação de tamanho via seca

Com o objetivo de validar as medidas da sonda Parsum para a matéria-prima foram realizados ensaios de fluidização a seco em que a sonda foi utilizada para determinação do tamanho de partícula. Nesses ensaios, procedeu-se a fluidização da matéria-prima sem aspersão de ligantes. Cinco tamanhos de *ring buffer*, foram testados com base em trabalhos anteriores (Silva, 2015 e Andreola, 2017). Os tamanhos testados foram 500, 2500, 5000, 10000 e 15000 partículas. Os experimentos tiveram duração suficiente para realização de 150 medidas. No entanto, as últimas 50 medidas foram desconsideradas, para a determinação dos valores médios, em função do arraste de material para o ciclone durante os ensaios. Os resultados obtidos pela

sonda foram comparados àqueles obtidos por difração a laser por meio do equipamento Mastersizer (Malvern Instruments, MAZ3000).

Os resultados para os tamanhos característicos em relação ao volume,  $D_{10}$ ,  $D_{50}$  e  $D_{90}$ , obtidos por difração a laser e pela sonda para os diferentes valores de *ring buffer*, são apresentados na Tabela 4.6. De acordo com os dados apresentados, é possível perceber uma importante divergência entre os valores obtidos por difração a laser e aqueles obtidos por velocimetria de filtro espacial. Os tamanhos característicos determinados por VFE foram maiores que os determinados por difração a laser. Essa diferença pode ser atribuída ao fato de o material ser muito fino e ter tamanho médio muito próximo ao mínimo tamanho que pode ser medido pela sonda, ou seja, 50  $\mu\text{m}$ .

Com base nos dados apresentados na Tabela 4.6 é possível observar que, de maneira geral, à medida que o número de partículas do *ring buffer* aumentou, os valores medidos para os tamanhos característicos diminuíram, mas, ainda sim, foram maiores que os medidos por difração a laser. Essa diminuição do valor de  $D_{50v}$  também foi observada por (Foltmann *et al.*, 2014) para o crescimento por recobrimento de *pellets* de celulose microcristalina com hidroclorotiazida e de pellets de teofilina em leito fluidizado Wurster.

Tabela 4.6: Tamanhos  $D_{10v}$ ,  $D_{50v}$  e  $D_{90v}$  para a matéria-prima determinados por difração a laser a seco e por velocimetria de filtro espacial para diferentes *ring buffer*.

	$D_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$D_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$D_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )
<b>Mastersizer</b>	$21,9 \pm 0,2^a$	$65,2 \pm 1,0^a$	$143,6 \pm 2,0^a$
<b>RB 500</b>	$72,4 \pm 3,3^b$	$134,9 \pm 12,6^{b,c}$	$228,6 \pm 37,0^b$
<b>RB 2500</b>	$72,3 \pm 2,5^b$	$135,8 \pm 6,4^b$	$236,9 \pm 19,8^c$
<b>RB 5000</b>	$72,8 \pm 2,8^b$	$140,0 \pm 7,2^{b,c}$	$232,6 \pm 12,7^{b,c}$
<b>RB 10000</b>	$72,5 \pm 4,8^b$	$133,0 \pm 7,2^c$	$218,6 \pm 16,3^d$
<b>RB 15000</b>	$69,3 \pm 3,6^c$	$125,1 \pm 8,1^d$	$214,1 \pm 14,7^d$

Letras diferentes na mesma coluna indicam diferença significativa ( $p < 0,05$ ).

Dessa maneira, os tamanhos característicos para a matéria-prima considerados neste estudo são os determinados por difração a laser. Entretanto, apesar de os valores medidos pela sonda Parsum terem divergido dos determinados por difração a laser, para a goma arábica antes do processo de aglomeração, foi realizada a comparação entre as duas técnicas durante o processo de aglomeração. Esses ensaios foram realizados para verificar se, à medida que a

partícula aumenta com a aglomeração, ocorre correspondência entres os valores medidos. Os resultados referentes a esta comparação são apresentados no próximo item.

#### **4.5.2 Comparação entre o método *off-line* e o método *in-line* de determinação de tamanho durante o processo de aglomeração**

A validação das medidas de tamanho realizadas pela sonda Parsum, durante o processo de aglomeração, foi feita pela comparação entre os resultados apresentados por ela e aqueles obtidos por difração a laser, por meio do equipamento Mastersizer (Malvern Instruments, MAZ3000), em alguns pontos do processo. Os parâmetros de medição (*ring buffer*) utilizados foram os mesmos dos ensaios via seca e basearam-se em estudos anteriores que usaram os mesmos equipamentos (Silva, 2015 e Andreola, 2017). Os valores de *ring buffer* foram 500, 2500, 5000, 10000 e 15000 partículas.

Os ensaios para validação das medidas a úmido foram realizados nas mesmas condições do ensaio preliminar 7 e água foi utilizada como ligante. Ao final da aspersão do volume pré-determinado de ligante, 60 mL, o material foi submetido a 5 minutos de secagem, ou seja, fluidização sem aspersão de ligante. Nesses ensaios a sonda foi utilizada para determinação do tamanho da partícula e aproximadamente 2 g de material foram retirados em 3 pontos do processo e analisados por difração a laser. O primeiro ponto de retirada de material foi após 15 minutos do início da aspersão de ligante; o segundo ponto foi após 30 minutos o início da aspersão de ligante e o terceiro ponto foi após os 5 minutos de secagem, ou seja, ao final do processo.

A comparação entre os valores medidos pela sonda Parsum para cada um dos *ring buffer* utilizados e aqueles obtidos por difração a laser no equipamento Matersizer (MS) podem ser observados na Tabela 4.7. Os valores apresentados para a sonda representam a média dos valores obtidos nos 5 *loops* anteriores a coleta de material. Os resultados medidos pela sonda apresentaram boa concordância com aqueles obtidos por difração a laser. Assim como observado por Andreola (2017), de maneira geral, para os ensaios a úmido, não foi observado nenhuma relação entre os tamanhos do *ring buffer* e as informações de tamanho de partícula. As medidas da sonda tomadas com os *ring buffer* de 500 e 2500 foram os que apresentaram maiores desvios.

Os valores medidos pela sonda Parsum para o  $D_{50v}$  apresentaram maior desvio, 40,6  $\mu\text{m}$ , para o *ring buffer* de 500 partículas no primeiro ponto de coleta. O menor desvio, 0,5  $\mu\text{m}$ , foi observado para o *ring buffer* de 15000 no segundo ponto de coleta. De maneira geral, a maior diferença entre os resultados apresentados pelas duas técnicas foi para o  $D_{90v}$ , mas, mesmo para esse tamanho característico, a maior diferença entre as duas técnicas apresentada pelo *ring buffer* de 5000 partículas não foi expressiva, ou seja, 24,8  $\mu\text{m}$ , cerca de 6,4% do valor obtido. (Silva, 2015 e Andreola, 2017) também observaram maior diferença no valor de  $D_{90v}$  para a comparação dessas duas técnicas. Vale lembrar que não é esperado que os valores medidos pelas duas técnicas sejam iguais, uma vez que são medidas físicas diferentes (apenas para uma esfera perfeita os valores seriam iguais).

Um fator importante na escolha do *ring buffer* é o tempo de repasse, ou seja, tempo necessário para que o *ring buffer* seja completamente preenchido, o que determina o tempo para iniciar as medições. Menores valores de *ring buffer* apresentam menor atraso no cálculo estatístico das distribuições de tamanho e menor tempo de repasse, sendo mais vantajosos.

Tabela 4.7: Tamanho de partícula medido *in-line* em ensaios de aglomeração utilizando a sonda Parsum em diferentes *ring buffer* e comparação com o método de difração a laser para diferentes pontos do processo.

	P1 (15 minutos)			P2 (30 minutos)			P3 (35 minutos)		
	D10v (µm)	D50v (µm)	D90v (µm)	D10v (µm)	D50v (µm)	D90v (µm)	D10v (µm)	D50v (µm)	D90v (µm)
MS 1	112,9±2,6 <sup>c</sup>	258,5±6,2 <sup>e</sup>	446,5±17,7 <sup>c</sup>	140,4±3,4 <sup>c</sup>	277,5±8,4 <sup>f</sup>	431,1±15,1 <sup>c,d</sup>	142,7±7,8 <sup>e</sup>	289,3±18,0 <sup>g</sup>	465,0±32,1 <sup>f</sup>
RB500	122,2±7,0 <sup>e</sup>	240,1±40,6 <sup>e</sup>	425,0±116,0 <sup>c</sup>	131,9±6,2 <sup>a</sup>	256,1±16,8 <sup>c</sup>	434,8±44,9 <sup>d</sup>	140,7±6,3 <sup>e</sup>	272,2±24,0 <sup>f</sup>	447,7±86,6 <sup>e,f</sup>
MS 2	93,1±2,8 <sup>d</sup>	185,1±4,4 <sup>c,d</sup>	299,8±4,0 <sup>a,b</sup>	112,3±4,6 <sup>b</sup>	234,5±6,8 <sup>a,d</sup>	396,3±12,4 <sup>a</sup>	111,6±1,8 <sup>b</sup>	208,2±3,4 <sup>a</sup>	335,5±6,6 <sup>b</sup>
RB2500	110,7±3,3 <sup>b,c</sup>	211,0±7,2 <sup>b</sup>	347,8±29,7 <sup>a,b</sup>	128,3±2,1 <sup>a</sup>	236,0±6,4 <sup>a,d</sup>	404,8±23,8 <sup>a,b,c</sup>	129,7±2,6 <sup>a</sup>	240,6±9,4 <sup>d,e</sup>	397,6±25,9 <sup>c,d</sup>
MS 3	98,6±1,3 <sup>a</sup>	<b>206,4±2,9<sup>a,b</sup></b>	352,3±5,7 <sup>b</sup>	118,6±3,3 <sup>b</sup>	<b>250,7±7,6<sup>b,c</sup></b>	416,8±12,8 <sup>a,b,c,d</sup>	118,0±1,6 <sup>c,d</sup>	<b>224,6±8,3<sup>b,c</sup></b>	363,3±18,0 <sup>a,b,c</sup>
RB5000	109,3±0,2 <sup>b,c</sup>	<b>205,4±0,6<sup>a,b</sup></b>	347,1±1,3 <sup>a,b</sup>	129,2±0,5 <sup>a</sup>	<b>248,9±2,6<sup>b,c</sup></b>	425,6±7,5 <sup>b,c,d</sup>	127,3±1,3 <sup>a</sup>	<b>235,3±4,0<sup>c,d</sup></b>	388,1±20,7 <sup>a,c,d</sup>
MS 4	99,3±2,3 <sup>a</sup>	202,2±7,0 <sup>a,b,c</sup>	334,0±12,1 <sup>a,b</sup>	112,4±2,2 <sup>b</sup>	224,7±4,9 <sup>d,e</sup>	359,1±5,9 <sup>e</sup>	120,9±5,3 <sup>d</sup>	218,4±3,4 <sup>a,b</sup>	342,1±9,1 <sup>a,b</sup>
RB10000	108,1±0,4 <sup>b</sup>	199,9±1,5 <sup>a,b,c</sup>	325,2±1,6 <sup>a,b</sup>	127,2±1,3 <sup>a</sup>	242,8±3,5 <sup>a,b</sup>	401,7±12,3 <sup>a,b</sup>	132,1±0,9 <sup>a</sup>	253,1±2,8 <sup>e</sup>	413,4±3,1 <sup>d,e</sup>
MS 5	92,1±1,7 <sup>d</sup>	179,3±4,7 <sup>d</sup>	291,8±8,9 <sup>a</sup>	109,7±5,3 <sup>b</sup>	215,7±11,3 <sup>e</sup>	346,0±18,1 <sup>e</sup>	113,9±2,2 <sup>b,c</sup>	214,7±4,4 <sup>a,b</sup>	343,3±5,5 <sup>a,b</sup>
RB15000	103,0±4,9 <sup>a</sup>	189,1±9,8 <sup>a,c,d</sup>	308,8±14,8 <sup>a,b</sup>	127,5±0,2 <sup>a</sup>	245,7±0,5 <sup>a,c</sup>	396,4±3,4 <sup>a</sup>	127,4±0,3 <sup>a</sup>	239,0±0,8 <sup>c,d,e</sup>	384,0±4,3 <sup>a,c,d</sup>

MS (1): material correspondente ao RB 500; MS (2): material correspondente ao RB 2500; MS (3): material correspondente ao RB 5000; MS (4) material correspondente ao RB 1000 e MS (5): material correspondente ao RB 15000. Letras diferentes na mesma coluna indicam diferença significativa a 95,0% de confiança pelo teste de Tukey.

As distribuições de tamanho de partícula para difração a laser e sonda Parsum também foram comparadas e, para o *ring buffer* de 5000 partículas, são mostradas nas Figura 4.5, Figura 4.6 e Figura 4.7. Os gráficos apresentam a média de 10 medidas obtidas por difração a laser e 5 medidas feitas por VFE em torno do ponto de coleta do material para análise por difração a laser.

As curvas de distribuição de tamanho para as duas técnicas foram muito próximas para o *ring buffer* de 5000, sendo assim, a distribuição de tamanho obtida pela sonda Parsum para esse *ring buffer* pode ser considerada representativa para as diferentes faixas de tamanho nos três pontos do processo. O Apêndice A apresenta uma comparação entre as curvas de distribuição de tamanho para as duas técnicas para os outros valores de *ring buffer* analisados.

Os resultados apresentados para os ensaios a úmido indicam confiabilidade no uso da técnica de monitoramento *in-line* do tamanho das partículas por velocimentria de filtro espacial para monitoramento do tamanho de partículas durante a aglomeração de goma arábica. Com base nos valores apresentados na Tabela 4.7, nas curvas de distribuição de tamanho para as duas técnicas e no tempo de repasse de dados optou-se por utilizar o *ring buffer* de 5000 partículas para tomada do tamanho das partículas durante o processo de aglomeração de goma arábica em pó.

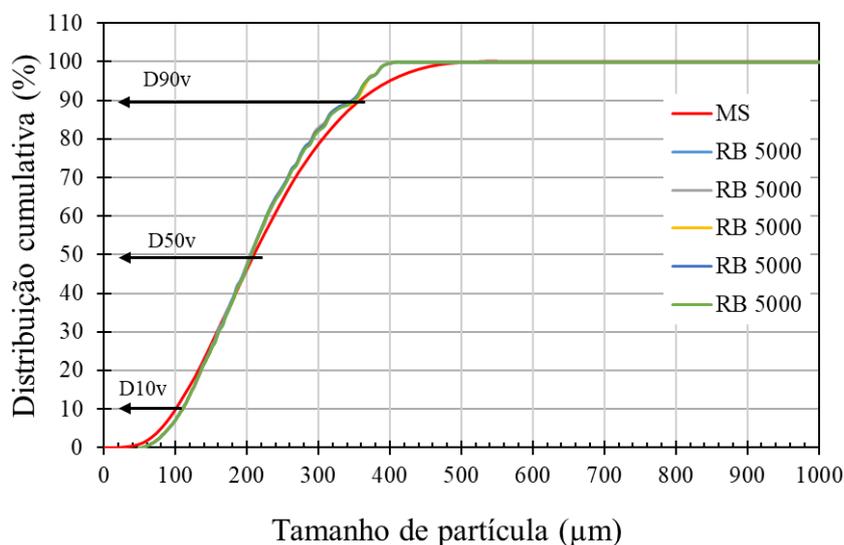


Figura 4.5: Curvas de distribuição cumulativas para *ring buffer* de 5000 após 15 minutos de processo (P1).

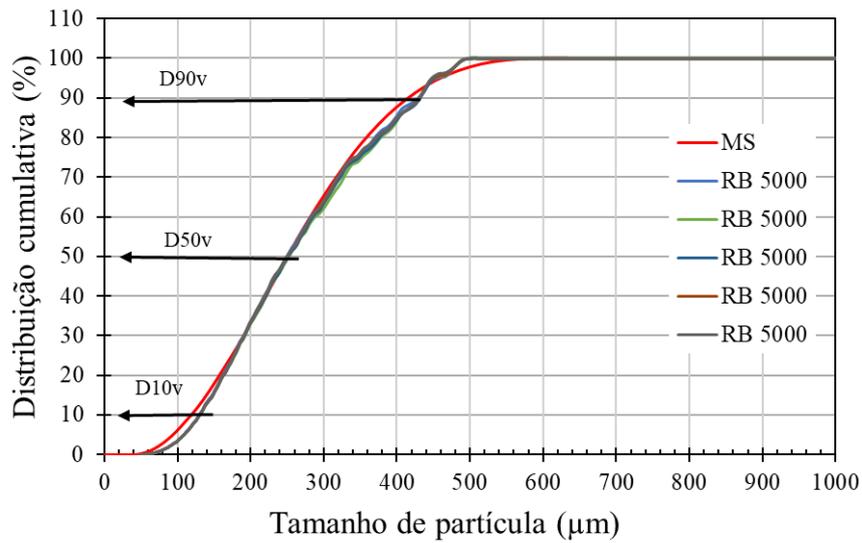


Figura 4.6: Curvas de distribuição cumulativas para *ring buffer* de 5000 após 30 minutos de processo (P2).

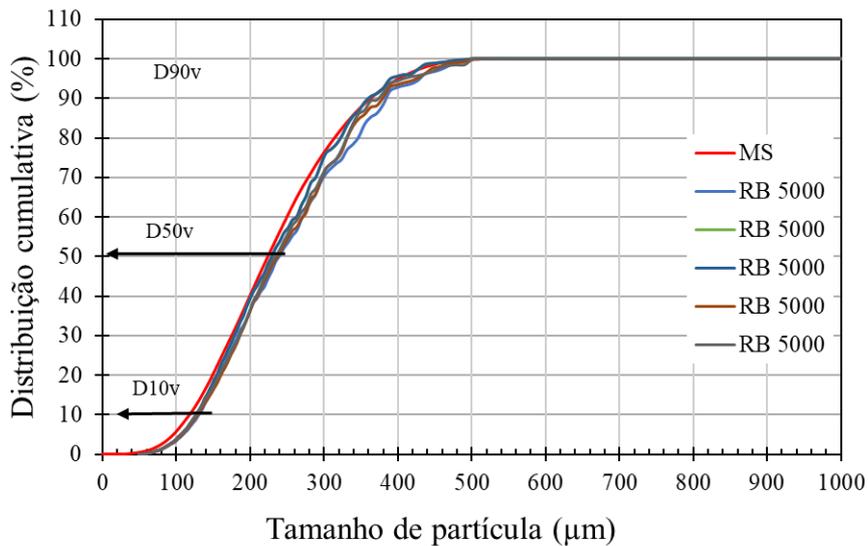


Figura 4.7: Curvas de distribuição cumulativas para *ring buffer* de 5000 ao final do processo (P3).

#### 4.6 AGLOMERAÇÃO UTILIZANDO ÁGUA COMO LIGANTE

Os ensaios de aglomeração de goma arábica com água como ligante foram realizados conforme descrito no item 3.7. As variáveis massa de matéria-prima e velocidade do ar foram mantidas fixas (Tabela 3.4). Os valores de altura do bico de atomização ( $H_b$ ) e pressão

relativa de atomização ( $P_{atz}$ ) foram determinados de acordo com os ensaios preliminares sendo 0,35 m e 0,5 bar, respectivamente. A faixa de variação da  $T_{ar}$  e  $Q_{lig}$  também foi determinada com base nos ensaios preliminares. O volume total de ligante inserido no leito foi de 80 mL, deste modo o tempo do processo variou de acordo com a vazão de ligante utilizada. As condições para cada ensaio e os resultados obtidos para o tamanho médio final ( $D_{50v}$ ) e para o rendimento do processo ( $\eta$ ) são apresentadas na Tabela 4.8. O valor atribuído ao  $D_{50v}$  final é a média das dez últimas medidas. A umidade do material momentos antes do final da aspersão ( $X_{b.u.FA}\%$ ) e ao final do processo ( $X_{b.u.}\%$ ) e a fração de torrões ( $F_{tor}\%$ ) também são apresentadas nessa tabela. Esses ensaios foram utilizados como base para determinação do planejamento experimental para estudo da aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma e soluções de inulina.

Tabela 4.8: Ensaios experimentais segundo o planejamento DCCR 2<sup>2</sup>, para aglomeração utilizando água como ligante.

<b>Ensaio</b>	<b><math>Q_{lig}</math> (mL/min)</b>	<b><math>T_{ar}</math> (°C)</b>	<b><math>D_{50vFA}</math> (<math>\mu</math>m)</b>	<b><math>D_{50v}</math> (<math>\mu</math>m)</b>	<b><math>\eta</math> (%)</b>	<b><math>X_{b.u.FA}</math> (%)</b>	<b><math>X_{b.u.}</math> (%)</b>	<b><math>F_{tor}</math> (%)</b>
1	1,5 (-1)	65,0 (-1)	288,66	279,0 $\pm$ 2,7	57,9	8,25	6,51 $\pm$ 0,27	7,9
2	1,5 (-1)	85,0 (+1)	-	251,7 $\pm$ 1,2	48,1	-	5,23 $\pm$ 0,18	7,8
3	3,0 (+1)	65,0 (-1)	333,82	302,1 $\pm$ 0,8	68,0	9,22	7,44 $\pm$ 0,28	2,8
4	3,0 (+1)	85,0 (+1)	272,70	278,7 $\pm$ 6,5	66,4	8,00	5,25 $\pm$ 0,21	4,5
5	1,2 (-1,41)	75,0 (0)	-	281,8 $\pm$ 7,3	44,6	-	5,42 $\pm$ 0,15	19,2
6	3,3 (+1,41)	75,0 (0)	285,66	301,7 $\pm$ 3,9	66,3	8,24	6,95 $\pm$ 0,16	5,3
7	2,3 (0)	60,9 (-1,41)	290,44	287,7 $\pm$ 4,1	65,3	8,71	7,64 $\pm$ 0,08	5,4
8	2,3 (0)	89,1 (+1,41)	-	244,9 $\pm$ 3,8	55,9	-	4,36 $\pm$ 0,20	6,3
9	2,3 (0)	75,0 (0)	276,84	274,5 $\pm$ 3,9	64,0	8,12	6,42 $\pm$ 0,52	6,4
10	2,3 (0)	75,0 (0)	275,24	287,1 $\pm$ 6,9	65,6	8,01	6,25 $\pm$ 0,32	5,3
11	2,3 (0)	75,0 (0)	279,40	285,2 $\pm$ 9,1	57,2	7,88	5,57 $\pm$ 0,17	5,4

$D_{50vFA}$ :  $D_{50v}$  ao final da aspersão de ligante.

O tempo de ensaio variou de acordo com as condições experimentais a depender da umidade do material momentos antes de completar a aspersão dos 80 mL de ligante. O ensaio 3 foi o de maior tempo de secagem, 8 minutos, pois a umidade do material, momentos antes do final da aspersão, foi igual a 9,22%. Os demais ensaios foram submetidos a 4 minutos de

secagem com exceção dos ensaios 2 e 5, que apresentaram baixo teor de umidade momentos antes do final da aspersão do ligante, 5,53% e 5,80%, respectivamente. Os três pontos centrais também foram submetidos a 4 minutos de secagem.

O  $D_{50v}$  aumentou para todos os ensaios realizados. O seu valor para a matéria-prima foi igual a  $65,2 \pm 1,0$  ( $\mu\text{m}$ ) e para a goma arábica aglomerada variou entre  $244,9 \pm 3,8$  ( $\mu\text{m}$ ) e  $302,1 \pm 0,8$  ( $\mu\text{m}$ ), para os ensaios 8 e 3, respectivamente (Tabela 4.8). Esses valores comprovam que de fato houve aumento no tamanho das partículas durante o processo e que a água pode ser utilizada como ligante para aglomeração de goma arábica. Estudos mostraram que para alguns materiais a água pode ser utilizada como ligante, como é o caso de proteína de ervilha (Nascimento, 2017) e acerola em pó (Dacanal, 2009). Porém, para a aglomeração de proteína de arroz, a água não foi considerada um bom ligante, pois o processo apresentou baixo rendimento e resultou em pequeno crescimento de partícula (Andreola, 2017). A viabilidade de aglomeração utilizando água como ligante está relacionada à solubilidade do material em água. Para materiais hidrossolúveis a aspersão de água possibilita a formação de uma película úmida e pegajosa e subsequente coalescência das partículas (Dacanal, 2009).

O rendimento do processo, apresentado na Tabela 4.8, variou entre 44,6% e 68,0% e a maioria dos ensaios apresentou rendimento acima de 50,0%. Os fatores que ocasionaram perdas foram o arraste de material para o ciclone e a formação de torrões, sendo que o arraste de material foi o fator principal. Ele ocorreu principalmente no início do processo, visto que a matéria-prima é um material muito fino. A formação de torrões representou perdas de material menores que 10,0% para todos os ensaios com exceção do ensaio 5, para o qual a perda por formação de torrões de 19,2%. A formação de torrões, apesar de não ser expressiva para a maioria das condições utilizadas influenciou o rendimento do processo como pode ser observado pelos resultados dos ensaios 3 e 5. O ensaio 3 apresentou maior  $\eta$  e menor  $F_{\text{tor}}$ , já o ensaio 5 apresentou menor  $\eta$  e maior  $F_{\text{tor}}$ .

Os ensaios podem ser considerados reprodutíveis de acordo com os dados apresentados na Tabela 4.8 e com a Figura 4.8. Essa figura apresenta a cinética de crescimento dos grânulos e a umidade do material, momentos antes do final da aspersão e ao final do processo, para os três ensaios realizados nas condições do ponto central. Nos três ensaios o aumento do  $D_{50v}$  em função do tempo foi muito similar, assim como a umidade do material.

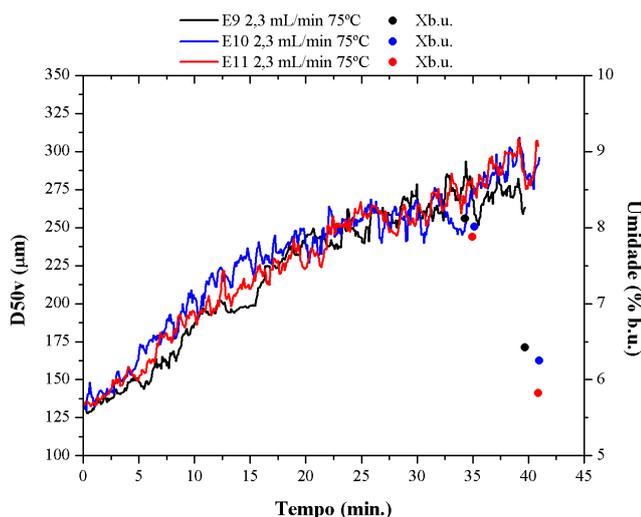


Figura 4.8: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e umidade do material para o ponto central (2,3 mL/min, 75 °C), para aglomeração de goma arábica com água.

Os dados experimentais obtidos para as respostas  $D_{50v}$  e  $\eta$  foram tratados estatisticamente para obtenção de modelos polinomiais que descrevessem o comportamento dessas respostas em função das variáveis independentes,  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$ . A significância estatística desses modelos e a qualidade do ajuste foram determinadas pela análise de variância (ANOVA) a um nível de confiança de 90,0% e pela realização o teste F de Fischer. O ajuste dos dados experimentais ao modelo foi avaliado por meio dos coeficientes de determinação ( $R^2$ ). A análise dos resultados obtidos e dos modelos propostos é apresentada para cada uma das respostas separadamente.

#### 4.6.1 Tamanho final da partícula e cinética de crescimento do grânulo

Os valores de  $D_{50v}$  mostrados na Tabela 4.8 indicam que as variáveis independentes,  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$ , exerceram influência sobre o tamanho final da partícula. O aumento da  $Q_{lig}$  favoreceu o aumento do  $D_{50v}$ , pois, quando a  $T_{ar}$  foi mantida constante para todas as comparações, maior  $D_{50v}$  foi observado quando maior  $Q_{lig}$  foi utilizada. O efeito inverso é observado para a temperatura, já que os ensaios com maior  $T_{ar}$  apresentaram menor valor de  $D_{50v}$ . Para ilustrar essa observação temos que o maior  $D_{50v}$  foi observado para o ensaio 3, que associou alta  $Q_{lig}$  (+1 ou 3,0 mL/min) e baixa  $T_{ar}$  (-1 ou 65 °C). O menor  $D_{50v}$  foi observado para o ensaio 8 que foi realizado mantendo-se a  $Q_{lig}$  no nível central (2,3 mL/min) e a temperatura no nível extremo superior (+1,4 ou 89 °C).

Uma análise estatística da significância dos efeitos das variáveis independentes na resposta  $D_{50v}$  foi feita por meio do diagrama de Pareto apresentado na Figura 4.9. Ele exibe os efeitos para as duas variáveis independentes bem como para as interações entre elas a um intervalo de confiança de 90,0%. Os efeitos estatisticamente significativos localizam-se à direita do limiar de significância ( $p < 0,1$ ).

O diagrama de Pareto reflete o que foi observado sobre o efeito das variáveis independentes no  $D_{50v}$ . A  $T_{ar}$  apresentou efeito linear negativo e significativo e a  $Q_{lig}$  apresentou efeito linear positivo e significativo. Pode ser observado também que o efeito da  $T_{ar}$  é mais pronunciado.

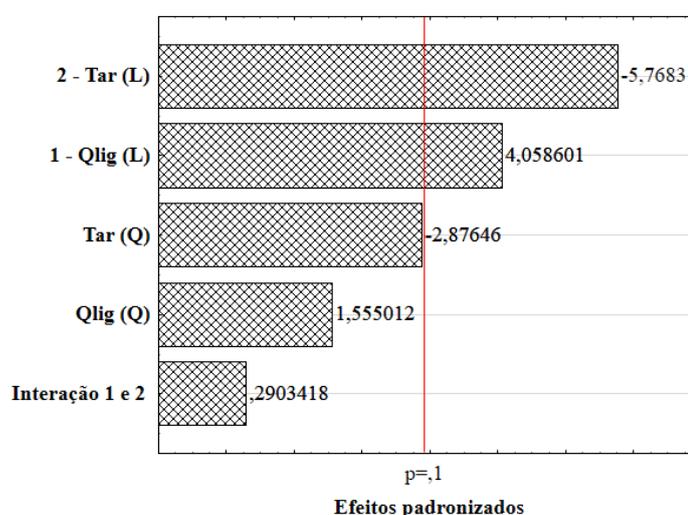


Figura 4.9: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis  $Q_{lig}$  (1) e  $T_{ar}$  (2) no  $D_{50v}$  para o processo de aglomeração de goma arábica com água.

Os dados mostrados na Tabela 4.8 e na Figura 4.9 foram analisados em conjunto com as cinéticas de crescimento do grânulo, construídas a partir dos dados coletados pela sonda Parsum. A análise dos efeitos dos parâmetros estatisticamente significativos é apresentada no item 4.6.1. O modelo polinomial proposto para o  $D_{50v}$  em função das variáveis independentes codificadas é apresentado na Equação 4.1. As superfícies de respostas geradas a partir desse modelo, também foram utilizadas para avaliação da influência das variáveis independentes no tamanho das partículas. Isso pois, esse modelo foi estatisticamente significativo e preditivo.

A significância estatística do modelo foi determinada com base na ANOVA e realização do teste F de Fischer, uma vez que os resíduos apresentaram distribuição normal. Os resultados obtidos foram  $F_{calc}$  para a regressão igual a  $17,74 > 3,45$  que é o  $F_{tab}$ , ou seja, o

modelo é significativo, e  $F_{\text{calc}}$  para a falta de ajuste igual a  $0,54 < 9,16$  que é o  $F_{\text{tab}}$ , o que indica que o modelo é preditivo. O coeficiente de determinação ( $R^2$ ) foi igual a 94,7%. O intervalo de confiança utilizada no teste F foi de 90,0%. Todavia é importante salientar que o modelo é válido para os limites experimentais utilizados neste estudo.

$$D_{50v} = 282,25 + 9,79Q_{\text{lig}} - 4,46Q_{\text{lig}}^2 - 13,91T_{\text{ar}} - 8,25T_{\text{ar}}^2 + 0,99Q_{\text{lig}} \cdot T_{\text{ar}} \quad 4.1$$

#### 4.6.1.1 Efeito da temperatura do ar de fluidização

A influência da temperatura do ar de fluidização na cinética de aglomeração e no valor de  $D_{50v}$  final é mostrada na Figura 4.10. A linha tracejada indica o fim da aspersão de ligante. A taxa de crescimento da partícula foi maior para aqueles ensaios com menor  $T_{\text{ar}}$ , ensaios 1 e 7. O aumento da temperatura do ar também reduziu o tamanho final das partículas quando foi utilizada água como ligante para a polpa de acerola em pó (Dacanal, 2009) e para proteína de ervilha (Nascimento, 2017). A goma arábica é solúvel em água e a aglomeração tendo água como ligante se deve ao umedecimento e pegajosidade das suas superfícies em contato com a água. O aumento da  $T_{\text{ar}}$  aumenta a taxa de evaporação do ligante e diminui o tempo para que ocorram choques efetivos entre que as partículas úmidas e com superfície pegajosa (Jimenez et al., 2006) o que reduz a taxa de crescimento do grânulo.

As cinéticas de crescimento do grânulo para ensaios com  $Q_{\text{lig}}$  igual a 1,5 mL/min, nos quais houve variação da temperatura, são mostradas na Figura 4.10 (a). No ensaio 1, com menor  $T_{\text{ar}}$ , foi necessário um período de secagem para reduzir a umidade do material abaixo de 8,0%, no ensaio 2, com maior  $T_{\text{ar}}$ , esse período não foi necessário. É possível observar que para o ensaio 1 houve uma pequena diminuição no  $D_{50v}$  durante o período de secagem, o que pode ser atribuído ao atrito/quebra dos grânulos. Todavia, mesmo com essa redução no tamanho da partícula ao final do processo, o  $D_{50v}$  final foi maior para o ensaio 1 do que para o ensaio 2, uma vez que, durante a aspersão de ligante, a menor  $T_{\text{ar}}$  proporcionou maior taxa de crescimento.

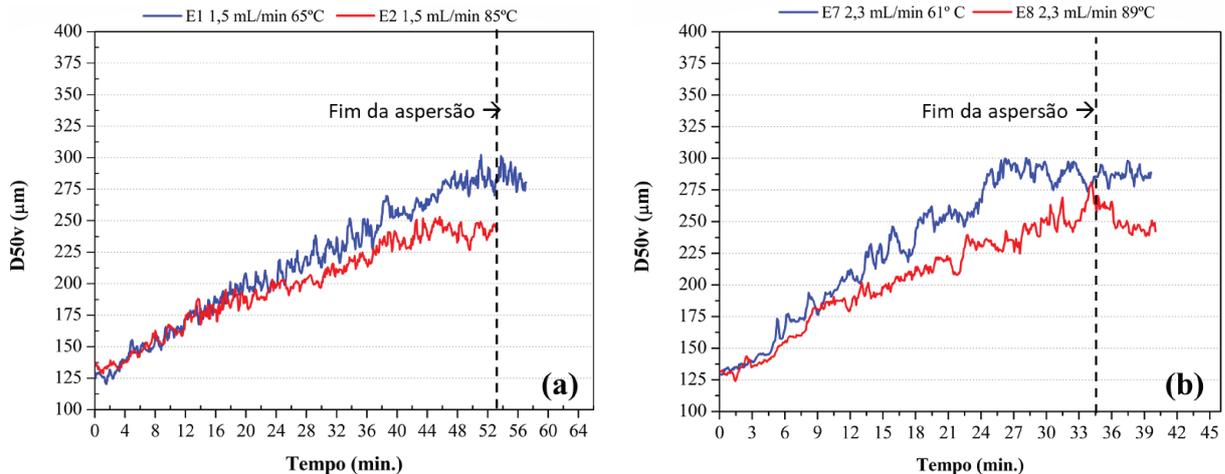


Figura 4.10: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  durante aglomeração de goma arábica em pó utilizando água como ligante para os ensaios (a) ensaios 1 e 2 e (b) ensaios 7 e 8.

As cinéticas de crescimento do grânulo para ensaios com  $Q_{\text{lig}}$  igual a 2,3 mL/min, com variação da temperatura são apresentadas na Figura 4.10 (b). Nessa comparação a taxa de crescimento para o ensaio 7 ( $T_{\text{ar}}$  igual a 61 °C) é maior, mas, a partir de 25 minutos de processo, ocorre uma estabilização do valor de  $D_{50v}$ , de modo que ao final da aspersão os valores de  $D_{50v}$  são muito próximos, 284,6 ( $\mu\text{m}$ ) para o ensaio 7 e 280,9 ( $\mu\text{m}$ ) para o ensaio 8. Entretanto, durante o período de secagem, que foi necessário para as duas condições, a estabilidade dos grânulos foi dependente da  $T_{\text{ar}}$  utilizada. No ensaio 7, não ocorreu redução no  $D_{50v}$  nesse período, ou seja, não foi observado quebra de grânulos e o valor do  $D_{50v}$  final foi igual  $287,7 \pm 4,1$  ( $\mu\text{m}$ ). Para o ensaio 8 ( $T_{\text{ar}}$  igual a 89 °C), no período de secagem, houve redução do valor de  $D_{50v}$ , o que resultou em menor valor final para o  $D_{50v}$ ,  $244,9 \pm 3,8$  ( $\mu\text{m}$ ). Isso nos permite afirmar que, além de proporcionar maior taxa de crescimento, temperaturas mais amenas produziram grânulos mais resistentes e estáveis. Segundo Tan et al. e (2006), quando ocorre a formação das pontes sólidas de forma mais rápida, nesse caso em razão da maior  $T_{\text{ar}}$ , a ligação entre as partículas é mais fraca produzindo grânulos menos estáveis e mais propensos a quebra.

A superfície de resposta, que representa a influência das variáveis independentes no  $D_{50v}$ , foi construída a partir do modelo proposto pela Equação 4.1 e é apresentada na Figura 4.11. É possível observar o quanto a temperatura influencia o tamanho da partícula e que, para valores de temperatura acima do ponto central, pequenos valores de  $D_{50v}$  são esperados independente da vazão de ligante.

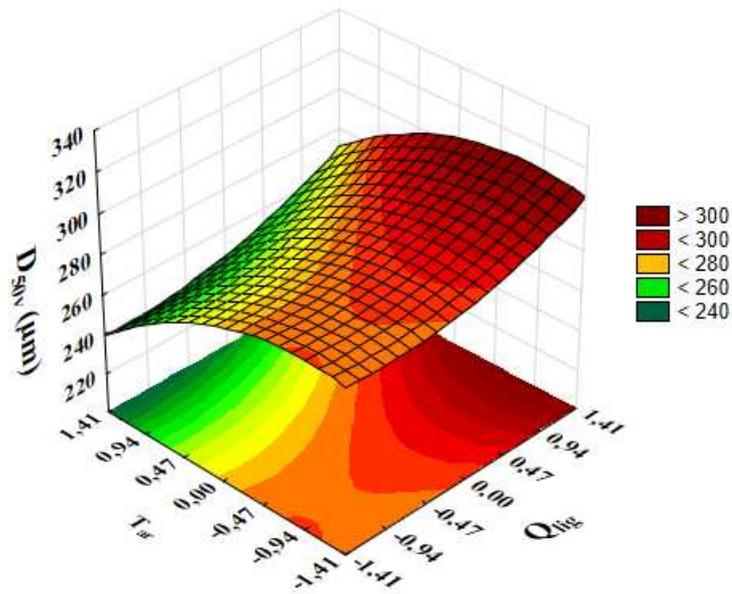


Figura 4.11: Superfície de resposta para o  $D_{50v}$  em função da  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$  para aglomeração de goma arábica utilizando água como ligante.

#### 4.6.1.2 Efeito da vazão de ligante

A influência da vazão de ligante, durante a aglomeração de goma arábica em pó com água como ligante, na cinética de aglomeração e no  $D_{50v}$  final é mostrada na Figura 4.12. A fim de realizar melhor comparação entre os ensaios com diferentes  $Q_{lig}$ , optou-se por analisar o efeito da  $Q_{lig}$  na cinética de crescimento e no valor de  $D_{50v}$  final construindo-se gráficos que representem a evolução do  $D_{50v}$  em função do tempo relativo de ensaio. Isso porque, como o volume de ligante foi mantido fixo, ensaios com diferentes vazões de ligante tiveram diferentes tempos de aspersão. O tempo relativo é igual a razão entre o tempo e o tempo total de aspersão de ligante. Dessa forma, o volume de solução adicionado é o mesmo para o mesmo tempo relativo. Os ensaios em que houve um período de secagem tiveram tempo relativo total maior que um.

Os ensaios com maior  $Q_{lig}$ , mantendo-se a  $T_{ar}$  constante, apresentaram maior oscilação no valor de  $D_{50v}$  ao longo do processo, mas, apesar disso, a taxa de crescimento das partículas e o  $D_{50v}$  final foram maiores para esses ensaios (Figura 4.12). O aumento da  $Q_{lig}$  aumenta a umidade relativa no interior do leito. Quando essa umidade excede um valor crítico as forças de adesão entre as partículas são potencializadas, pois ocorre a saturação dos seus poros e as camadas de ligante disponíveis na superfície dessas partículas aumentam a

probabilidade de coalescência entre elas e subsequente consolidação da estrutura dos grânulos (Liu et al., 2000; Iveson et al., 2001 e Hemati et al., 2003). Nesse caso, como a goma arábica é hidrossolúvel, a maior  $Q_{lig}$  torna a superfície das partículas mais pegajosa aumentando a taxa de coalescência entre elas o que resulta em maior taxa de crescimento da partícula. O maior umedecimento das partículas é comprovado pela umidade do material (Tabela 4.8).

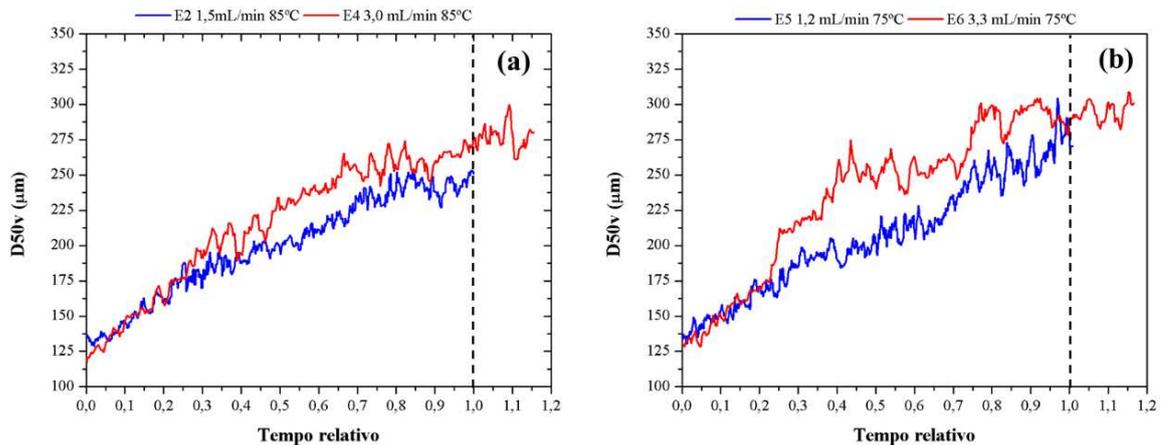


Figura 4.12: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  durante aglomeração de goma arábica em pó utilizando água como ligante para (a) ensaios 2 e 4 e (b) ensaios 5 e 6.

É interessante observar também o efeito do maior umedecimento das partículas no comportamento do  $D_{50v}$  durante o período de secagem. Durante esse período, com exceção do ensaio 3, em que o tempo de secagem foi maior, os ensaios com maior  $Q_{lig}$  não apresentaram redução no tamanho da partícula. O  $D_{50v}$  manteve-se praticamente constante ou apresentou um leve aumento. Isso indica que a superfície das partículas ainda continha umidade suficiente para formação de pontes líquidas e coalescência mesmo sem a aspersão de ligante. Como descrito anteriormente, este comportamento pode ser observado no digrama de Pareto (Figura 4.9).

A superfície de resposta para o valor de  $D_{50v}$  esperado, de acordo com as variáveis  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$ , segundo o modelo apresentado na Equação 4.1, também apresenta a tendência de aumento do  $D_{50v}$  à medida que a  $Q_{lig}$  aumenta (Figura 4.11). É possível observar também que à medida que a  $Q_{lig}$  aumenta, o efeito da temperatura no  $D_{50v}$  diminui, ou seja, em altas vazões de ligante ocorre o umedecimento mais intenso de maneira que a secagem do ligante, mais intensa à temperatura mais alta, não prejudica tanto a formação de pontes líquidas e, por conseguinte, a coalescência e consolidação dos grânulos.

#### 4.6.2 Rendimento do processo

Com base nos dados apresentados na Tabela 4.8, é possível observar a influência das variáveis independentes no rendimento do processo ( $\eta$ ). De maneira geral, quanto menor a  $Q_{lig}$ , menor foi o rendimento obtido. O menor rendimento (44,6%), por exemplo, foi observado para o ensaio 5, em que a  $Q_{lig}$  foi mantida em seu nível extremo inferior (-1,41 ou 1,2 mL/min). Para as condições intermediárias, ponto central, foram observados valores intermediários de  $\eta$  e o maior rendimento (68,0%) foi observado para o ensaio 3, em que foi utilizada alta  $Q_{lig}$  (+1 ou 3,0 mL/min) e baixa  $T_{ar}$  (-1 ou 65 °C). Esse comportamento está relacionado à influência das variáveis independentes no tamanho das partículas, pois o aumento da  $Q_{lig}$  e a diminuição na  $T_{ar}$  aumentaram o  $D_{50v}$  dessa maneira é esperado que aumentem também o  $\eta$ . Isto porque o arraste de material foi o principal fator de perda e, quanto maior o tamanho da partícula, menor a probabilidade de que ela seja arrastada pelo ar de fluidização. Além disso, como o volume de ligante foi fixado, as condições com maior  $Q_{lig}$  tem menor tempo de processo de modo que as partículas estão sujeitas ao arraste por menor tempo.

A análise estatística da significância dos efeitos das variáveis independentes na resposta  $\eta$ , por meio do gráfico de Pareto a um intervalo de confiança de 90,0%, é apresentada na Figura 4.13. Os efeitos estatisticamente significativos localizam-se à direita do limiar de significância ( $p < 0,1$ ). A  $Q_{lig}$  foi a única variável a apresentar efeito estatisticamente significativo no rendimento do processo e, portanto, será discutida separadamente. Apesar de não apresentar efeito estatisticamente significativo a  $T_{ar}$  apresentou efeito negativo no rendimento do processo, ou seja, o seu aumento causa redução no  $\eta$ .

Além dos resultados obtidos, a análise do efeito da  $Q_{lig}$ , único parâmetro estatisticamente significativo, foi feita com base na superfície de resposta construída a partir do modelo polinomial para variáveis codificadas proposto na Equação 4.2. Os resíduos apresentaram distribuição normal. Desse modo, o modelo foi testado estatisticamente por ANOVA e pelo teste F de Fischer com intervalo de confiança de 90,0%. Esse modelo foi estatisticamente significativo e preditivo, uma vez que o  $F_{calc}$  para a regressão, 11,91, foi maior que o  $F_{tab}$ , 3,45, e que o seu  $F_{calc}$  para a falta de ajuste, 0,16, foi menor do que o  $F_{tab}$ , 9,16. O  $R^2$  foi igual a 92,3%. Todavia, é importante salientar que o modelo é válido apenas para os limites experimentais utilizados neste estudo.

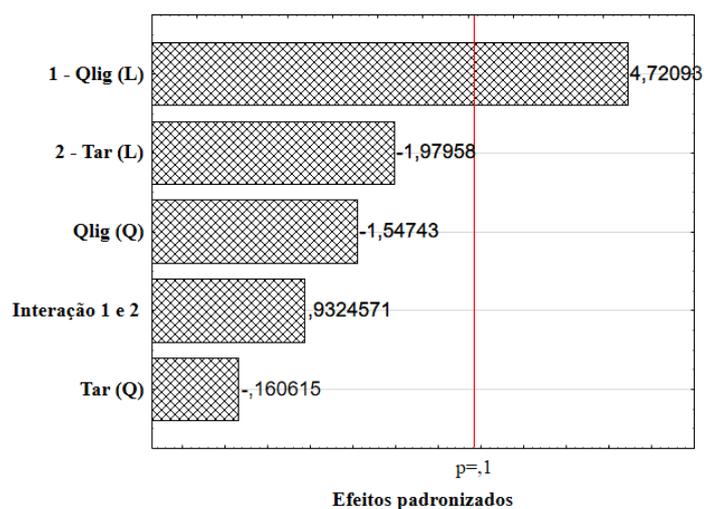


Figura 4.13: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis  $Q_{lig}$  (1) e  $T_{ar}$  (2) no rendimento do processo de aglomeração de goma arábica em pó utilizando água como ligante.

$$D50_v = 62,27 + 7,39Q_{lig} - 2,88Q_{lig}^2 - 3,10T_{ar} - 0,30T_{ar}^2 + 2,07Q_{lig} \cdot T_{ar} \quad 4.2$$

A fração de torrões em relação à quantidade de produto, apresentada na Figura 4.14, não apresentou uma tendência de acordo com as condições utilizadas. Contudo, pode ser observado que houve uma relação entre a fração de torrões formados e o rendimento do processo, pois os ensaios com maior  $F_{tor}$  foi também o que apresentaram menores rendimentos.

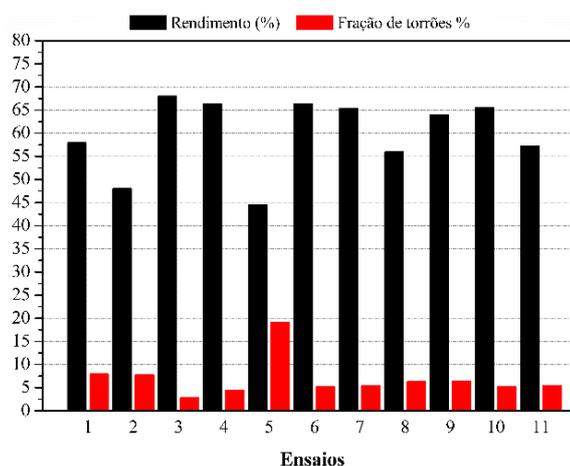


Figura 4.14: Rendimento e fração de torrões para os ensaios de aglomeração utilizando água como ligante.

#### 4.6.2.1 Efeito da vazão de ligante

O aumento do rendimento do processo quando a  $Q_{\text{lig}}$  é aumentada está relacionado à maior umidade no interior do leito. Em ensaios com vazão de ligante mais alta, maior foi a umidade do material e mais alta a taxa de crescimento dos grânulos, quando comparadas àquelas observadas nos ensaios com menor  $Q_{\text{lig}}$ . Esse comportamento foi discutido no item 4.6.1.2 e pode ser observado nas cinéticas de crescimento do grânulo apresentadas na Figura 4.12. Para a condição que apresenta maior taxa de crescimento, mais rápida é a redução na fração de partículas muito pequenas e como essas partículas são mais suscetíveis ao arraste para o ciclone menor parcela do material é arrastado. Como o arraste de material para o ciclone foi o fator que mais contribuiu para a redução no  $\eta$ , é coerente que o aumento na  $Q_{\text{lig}}$  resulte em maior  $\eta$ .

A maior alteração na distribuição de partículas para maiores  $Q_{\text{lig}}$  pode ser visualizada na Figura 4.15. Nela é apresentada a distribuição de tamanho para a matéria-prima, para o ensaio 1 ( $Q_{\text{lig}}$  igual a 1,5 mL/min e  $T_{\text{ar}}$  igual a 65 °C) e para o ensaio 3 ( $Q_{\text{lig}}$  igual a 3,0 mL/min e  $T_{\text{ar}}$  igual a 65 °C), quando o tempo relativo é igual a 0,5, ou seja, quando a metade do volume total de ligante já havia sido inserido no leito. É possível observar que, inicialmente, quase a totalidade das partículas tem tamanho menor que 250  $\mu\text{m}$  e que, quando maior  $Q_{\text{lig}}$  foi utilizada, a redução na fração dessas partículas foi mais expressiva. O ensaio 1 apresenta pouco menos que 70,0% de partículas menores que 250  $\mu\text{m}$ , já no ensaio 3 essas partículas foram reduzidas a aproximadamente 50,0%.

A superfície de resposta, que representa a influência das variáveis independentes no  $\eta$ , foi construída a partir do modelo proposto na Equação 4.2, uma vez que o modelo se mostrou significativo e os resíduos apresentaram distribuição normal, e é apresentada na Figura 4.16. Nessa superfície é possível observar que quanto maior o nível da  $Q_{\text{lig}}$ , maior é o rendimento esperado. O efeito da  $T_{\text{ar}}$  é pouco relevante e é mais expressivo quando menores valores de  $Q_{\text{lig}}$  são utilizados. O que indica que não ocorre secagem excessiva dentro do leito impedindo o crescimento das partículas a não ser para valores extremos e inferiores de  $Q_{\text{lig}}$ .

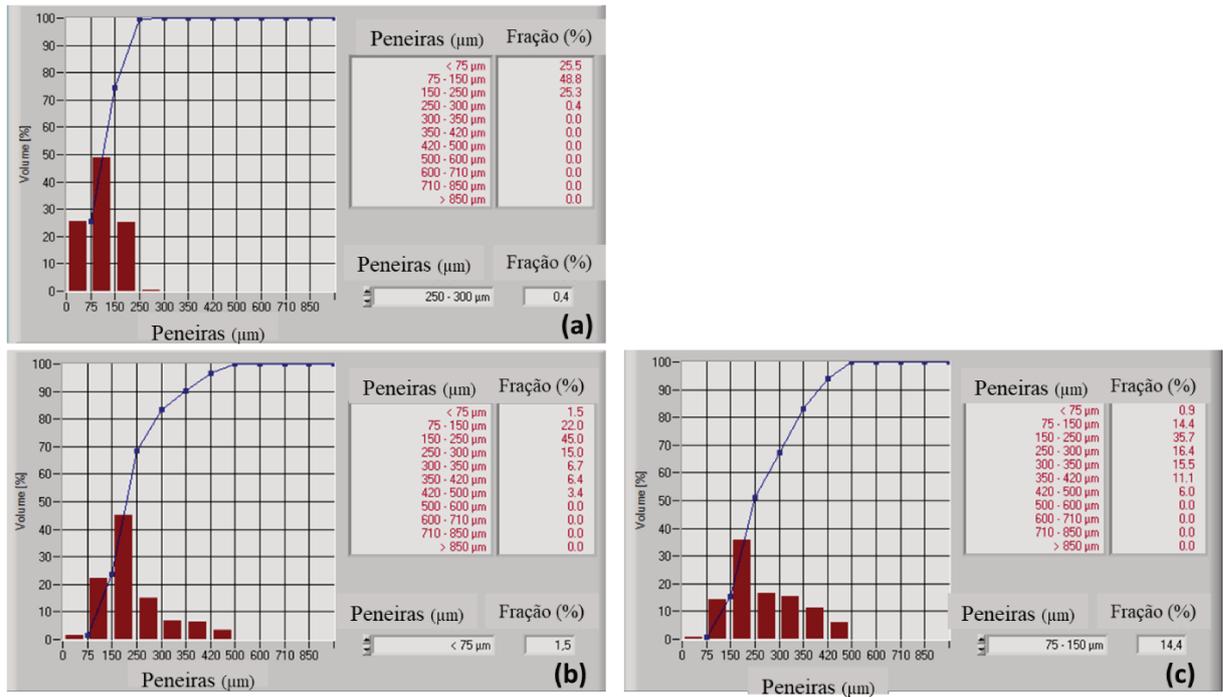


Figura 4.15: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas pela sonda Parsum antes do início da aglomeração com água (a) e após inserção de metade do ligante para o ensaio 1 (b) e para o ensaio 3 (c).

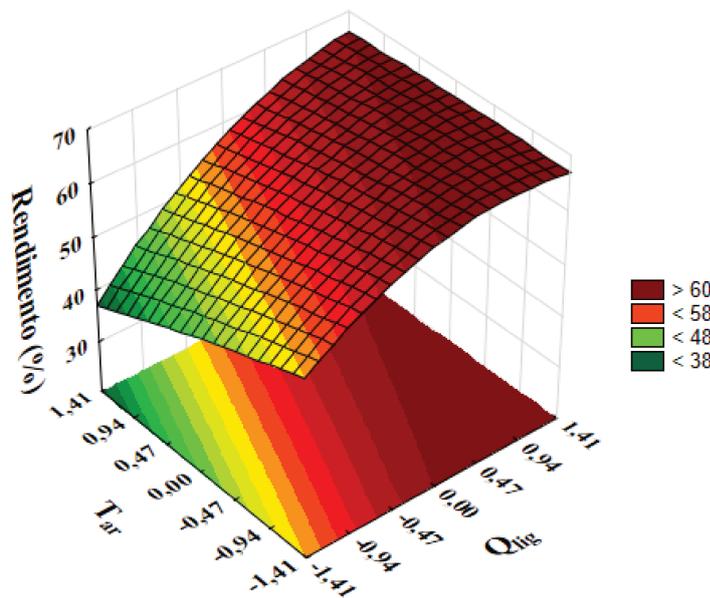


Figura 4.16: Superfície de resposta para  $\eta$  em função da  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$  para aglomeração de goma arábica utilizando água como ligante.

### 4.6.3 Caracterização do produto aglomerado

#### 4.6.3.1 Distribuição do tamanho das partículas

A sonda Parsum coleta informações sobre distribuição de tamanho das partículas e dispõe os dados de acordo com as peneiras da série *Tyler*. As frações retidas (% volume) são mostradas em histogramas e é construída a curva de distribuição cumulativa. As medidas são feitas e mostradas em tempo real e os dados são armazenados a cada 5,12 segundos. É possível, assim, visualizar as alterações na distribuição de tamanho de partícula de acordo com as condições do processo e compará-las para os produtos aglomerados sob diferentes condições de maneira rápida sem análises adicionais.

As distribuições de tamanho para a matéria-prima e para o aglomerado que apresentou maior  $D_{50v}$ , ensaio 3, são apresentadas na Figura 4.17. A alteração na distribuição de tamanho das partículas e a expressiva redução de partículas menores que 150  $\mu\text{m}$  comprova a viabilidade de aglomeração de goma arábica no sistema utilizado. Após o processo de aglomeração, o material é praticamente isento de partículas menores que 75  $\mu\text{m}$  e passa a apresentar partículas maiores que 250  $\mu\text{m}$ , que antes representavam uma fração muito pequena. Essa alteração na distribuição do tamanho de partícula contribui para que a sua molhabilidade e a sua dispersão sejam aprimoradas e para que ocorra menor formação de poeira durante o seu manuseio.

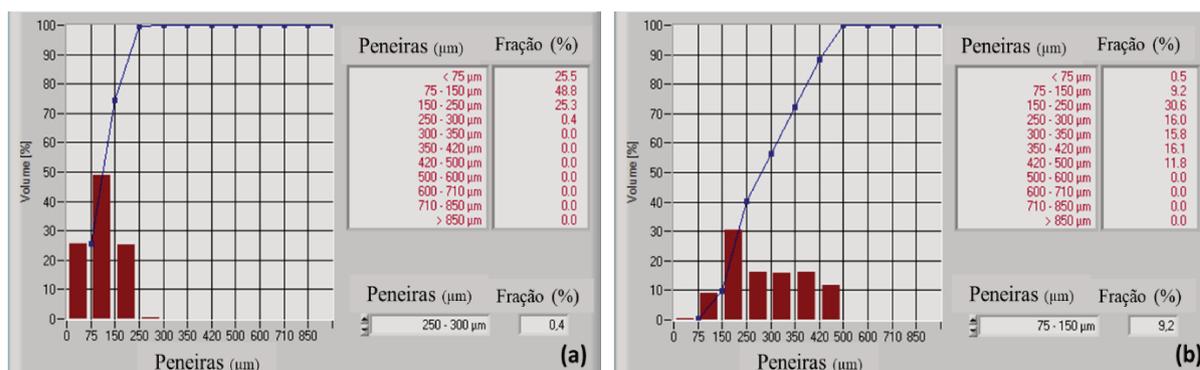


Figura 4.17: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica (a) e para produto aglomerado com água obtido no ensaio 3 (b).

#### 4.6.3.2 Propriedades de fluidez

Após o processo de aglomeração, a propriedade de fluidez da goma arábica apresentou uma ligeira melhora, com redução no valor do  $I_{Carr}$ , mas não houve mudança no nível de fluidez para nenhuma das condições utilizadas. Os resultados obtidos são apresentados na Tabela 4.9. Esses resultados indicam que o nível de fluidez da goma arábica em pó pode ser aprimorado, mas que as condições utilizadas nesses ensaios preliminares ainda não são as mais apropriadas.

Tabela 4.9:  $I_{Carr}$  e nível de fluidez para a matéria-prima e para os produtos obtidos nas condições do planejamento experimental para aglomeração de goma arábica com água.

Ensaio	$Q_{lig}$ (mL/min)	$T_{ar}$ (°C)	$\rho_b$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\rho_t$ (g/cm <sup>3</sup> )	$I_{Carr}$ (%)	Nível de fluidez
MP	-	-	0,43 ± 0,01	0,59 ± 0,02	27,7 ± 1,3	Moderado
1	1,5	65	0,34 ± 0,00 <sup>1</sup>	0,46 ± 0,00 <sup>5</sup>	26,2 ± 1,1	Moderado
2	1,5	85	0,35 ± 0,01	0,46 ± 0,01	24,2 ± 1,4	Moderado
3	3,0	65	0,29 ± 0,00 <sup>2</sup>	0,39 ± 0,01	25,2 ± 3,0	Moderado
4	3,0	85	0,30 ± 0,01	0,38 ± 0,00 <sup>6</sup>	20,5 ± 1,7	Moderado
5	1,2	75	0,37 ± 0,01	0,49 ± 0,01	23,7 ± 0,2	Moderado
6	3,3	75	0,27 ± 0,00 <sup>3</sup>	0,36 ± 0,01	23,8 ± 2,6	Moderado
7	2,3	61	0,29 ± 0,00 <sup>4</sup>	0,39 ± 0,01	24,6 ± 1,8	Moderado
8	2,3	90	0,35 ± 0,01	0,45 ± 0,01	23,9 ± 1,0	Moderado
9	2,3	75	0,34 ± 0,01	0,43 ± 0,01	21,4 ± 1,4	Moderado
10	2,3	75	0,30 ± 0,03	0,49 ± 0,04	22,5 ± 1,4	Moderado
11	2,3	75	0,33 ± 0,01	0,43 ± 0,0	22,5 ± 1,4	Moderado

\*<sup>1</sup>0,003; <sup>2</sup>0,004; <sup>3</sup>0,004; <sup>4</sup>0,00; <sup>5</sup>0,003; <sup>6</sup>0,003.

## 4.7 AGLOMERAÇÃO UTILIZANDO SOLUÇÕES DE GOMA

A análise da aglomeração de goma arábica utilizando soluções da própria goma como agente ligante foi feita com base em um planejamento experimental composto central rotacional (DCCR). As variáveis  $H_b$ ,  $P_{atz}$  e massa de matéria-prima foram mantidas fixas e os seus valores foram os mesmos utilizados na aglomeração utilizando água como ligante. Nesse planejamento, apenas o volume total de ligante adicionado foi modificado, pois, com a experiência adquirida após a realização da aglomeração de goma arábica tendo água como

ligante, percebeu-se a viabilidade de trabalhar com um volume de ligante total adicionado igual a 100 mL.

As condições utilizadas para as variáveis independentes,  $Q_{\text{lig}}$  e  $T_{\text{ar}}$ , também foram determinadas com base nos ensaios preliminares. A  $C_{\text{lig}}$  máxima da solução de goma arábica a ser utilizada foi determinada de acordo com testes de atomização para soluções de goma arábica com diferentes concentrações, 20,0%, 22,5%, 25,0%, 27,5% e 30,0%. A concentração de 25,0% mostrou-se limite, visto que para valores superiores a formação do *spray* não foi homogênea em decorrência da viscosidade da solução. Dessa forma, a maior concentração utilizada nesse estudo foi de 24,9% (m/m).

As condições para cada ensaio e os resultados obtidos para o tamanho médio final das partículas ( $D_{50v}$ ), para o rendimento do processo ( $\eta$ ) e para a fração de torrões ( $F_{\text{tor}}$ ) formada, são apresentados na Tabela 4.10. O valor atribuído ao  $D_{50v}$  é a média de dez medidas feitas a partir da parada da atomização de ligante. Em decorrência dos resultados obtidos durante a aglomeração utilizando água, ou seja, a ocorrência de quebra dos grânulos durante o período de secagem, nesse planejamento foi estabelecido o valor de 10,0% como limite superior para o teor de umidade do material. Assim, o limite de umidade estabelecido pelo fabricante da matéria-prima é atendido e tem-se a possibilidade de obtenção de grânulos maiores. Desse modo, não foi necessário aplicar um período exclusivamente de secagem para nenhuma das condições experimentais testadas.

O  $D_{50v}$  aumentou expressivamente para todos os ensaios realizados, uma vez que o  $D_{50v}$  para a matéria-prima foi igual a  $65,2 \pm 1,0$  ( $\mu\text{m}$ ) e para a goma arábica aglomerada variou entre  $255,2 \pm 5,4$  ( $\mu\text{m}$ ) e  $378,8 \pm 8,2$  ( $\mu\text{m}$ ). Esses valores comprovam que de fato houve aglomeração durante o processo e indicam maior eficiência das soluções de goma arábica como ligante quando comparadas à água. A boa eficiência de soluções de goma arábica como ligante durante a aglomeração de materiais orgânicos também foi demonstrada em estudos recentes de aglomeração de pectina (Hirata, 2015) e de proteína isolada de ervilha (Nascimento, 2017).

O  $\eta$ , apresentado na Tabela 4.10, variou entre 16,3% e 71,5% e a maioria dos ensaios apresentou rendimento acima de 50,0%. O arraste de material para o ciclone e a formação de torrões foram os fatores que ocasionaram perdas no processo, tendo o primeiro efeito mais acentuado. O arraste de material ocorreu principalmente no início do processo, visto que a matéria-prima é um material muito fino. A formação de torrões apresentou menor efeito

na queda de rendimento do processo, pois a fração de torrões em relação à quantidade de produto obtido foi menor que 10,0% para todos os ensaios, com exceção do ensaio 14, em que a perda de material por formação de torrões foi igual a 14,5%. De todo modo, a formação de torrões não foi determinante no rendimento, já que o menor rendimento não foi observado para esse ensaio e sim para o ensaio 3 que apresentou uma fração de torrões de apenas 1,8%.

Tabela 4.10: Planejamento DCCR 2<sup>3</sup>, D<sub>50v</sub>, X<sub>b.u.</sub> e  $\eta$  e para aglomeração utilizando soluções de goma arábica.

Ensaio	Q <sub>lig</sub> (mL/min)	T <sub>ar</sub> (°C)	C <sub>lig</sub> %	D <sub>50v</sub> (μm)	X <sub>b.u.</sub> (%)	$\eta$ (%)
1	1,5 (-1)	65 (-1)	5,6 (-1)	316,8 ± 3,0	6,1 ± 0,0 <sup>1</sup>	52,0
2	1,5 (-1)	65 (-1)	20,0 (+1)	312,7 ± 3,9	5,6 ± 0,2	53,6
3	1,5 (-1)	85 (+1)	5,6 (-1)	329,4 ± 5,3	3,0 ± 0,2	16,3
4	1,5 (-1)	85 (+1)	20,0 (+1)	310,1 ± 11,4	3,3 ± 0,2	47,9
5	3,0 (+1)	65 (-1)	5,6 (-1)	306,3 ± 10,1	8,6 ± 0,1	69,1
6	3,0 (+1)	65 (-1)	20,0 (+1)	378,8 ± 8,2	7,5 ± 0,1	60,8
7	3,0 (+1)	85 (+1)	5,6 (-1)	293,3 ± 8,0	5,9 ± 0,2	54,2
8	3,0 (+1)	85 (+1)	20,0 (+1)	339,3 ± 5,6	5,4 ± 0,2	57,2
9	1,0 (-1,68)	75 (0)	12,8 (0)	321,3 ± 7,8	4,1 ± 0,1	41,7
10	3,6 (+1,68)	75 (0)	12,8 (0)	292,9 ± 4,3	7,6 ± 0,1	71,5
11	2,3 (0)	58 (-1,68)	12,8 (0)	354,0 ± 4,6	7,9 ± 0,2	61,1
12	2,3 (0)	92 (+1,68)	12,8 (0)	318,9 ± 4,3	4,3 ± 0,1	53,8
13	2,3 (0)	75 (0)	0,7 (-1,68)	255,2 ± 5,4	6,0 ± 0,1	45,7
14	2,3 (0)	75 (0)	24,9 (+1,68)	320,2 ± 8,1	6,0 ± 0,3	44,8
15	2,3 (0)	75 (0)	12,8 (0)	350,8 ± 6,0	6,5 ± 0,1	58,3
16	2,3 (0)	75 (0)	12,8 (0)	338,7 ± 6,9	6,1 ± 0,2	57,1
17	2,3 (0)	75 (0)	12,8 (0)	339,4 ± 4,7	6,0 ± 0,1	57,2

\*10,03

Os ensaios podem ser considerados reprodutíveis de acordo com os dados apresentados na Tabela 4.10 e com a Figura 4.18. Essa figura apresenta a cinética de crescimento dos grânulos e evolução da umidade do material para os ensaios realizados nas condições do ponto central. Isso reforça a viabilidade de utilização da técnica VFE por meio da

sonda Parsum para monitorar o tamanho das partículas, conforme já havia sido demonstrado por (Silva, 2015 e Andreola, 2017).

Os dados experimentais obtidos para as respostas  $D_{50v}$  e  $\eta$  foram tratados estatisticamente para obtenção de modelos polinomiais que descrevessem o comportamento dessas respostas em função das variáveis independentes,  $Q_{lig}$ ,  $T_{ar}$ ,  $C_{lig}$ . A significância estatística desses modelos e a qualidade do ajuste foram determinadas por ANOVA a um nível de confiança de 90,0% e pela realização o teste F de Fischer. O ajuste do modelo aos dados experimentais foi avaliado por meio dos coeficientes de determinação ( $R^2$ ).

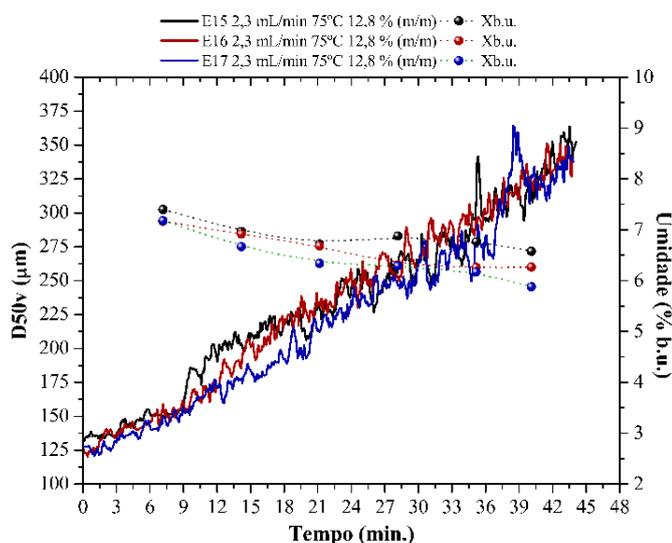


Figura 4.18: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade do material para o ponto central (2,3 mL/min, 75 °C, 12,8% (m/m)), para aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma.

A análise dos resultados obtidos e modelos propostos será apresentada para cada uma das respostas separadamente. Ao final, é apresentado um modelo proposto para otimização do processo levando-se em conta as duas respostas analisadas.

#### 4.7.1 Tamanho final da partícula e cinética de crescimento do grânulo

Os valores de  $D_{50v}$  obtidos nos ensaios correspondentes aos pontos axiais, ensaios de 9 a 14, Tabela 4.10, indicam que as variáveis independentes,  $Q_{lig}$ ,  $T_{ar}$ ,  $C_{lig}$ , exerceram influência sobre o tamanho final da partícula. O maior tamanho final foi observado para o ensaio 6, que associou alta  $Q_{lig}$  (3,0 mL/min), baixa  $T_{ar}$  (65°C) e alta  $C_{lig}$  (20,0% (m/m)). O menor valor foi observado para o ensaio 13, que foi realizado mantendo-se a  $Q_{lig}$  e a  $T_{ar}$  nos níveis

centrais, 2,3 mL/min e 75 °C, respectivamente, e a  $C_{lig}$  no nível mais baixo (0,7% (m/m)). Isso indica que a  $C_{lig}$  exerce maior influência sobre o  $D_{50v}$ , em relação às outras duas.

Uma análise estatística da significância dos efeitos das variáveis independentes na resposta  $D_{50v}$  foi feita por meio do diagrama de Pareto apresentado na Figura 4.19. Ele exibe os efeitos para as três variáveis independentes bem como para as interações entre elas a um intervalo de confiança de 90,0%. Os efeitos estatisticamente significativos localizam-se à direita do limiar de significância ( $p < 0,1$ ).

Os resultados apresentados na Figura 4.19 confirmam as evidências apresentadas na Tabela 4.10 e indicam que, dentre as variáveis independentes, a  $C_{lig}$  exerceu maior influência sobre o tamanho final das partículas, seguida da  $Q_{lig}$ . A  $T_{ar}$  foi a variável que apresentou menor influência no valor de  $D_{50v}$  final. Foi feita uma análise dos efeitos de cada uma das variáveis independentes nessa resposta com base nos dados da Tabela 4.10 e nas cinéticas de crescimento do grânulo construídas com os dados obtidos com a Sonda Parsum.

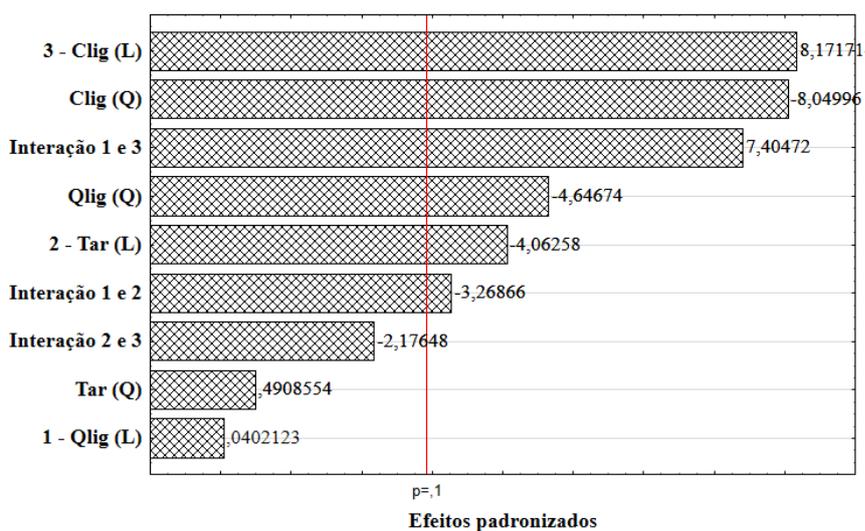


Figura 4.19: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis  $Q_{lig}$  (1),  $T_{ar}$  (2) e  $C_{lig}$  (3) no  $D_{50v}$  final para o processo de aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma.

Além das cinéticas de crescimento dos grânulos, as superfícies de respostas geradas a partir do modelo polinomial proposto, utilizando-se variáveis codificadas, para o  $D_{50v}$  (Equação 4.3) também foram utilizadas para a avaliação da influência das variáveis independentes e estatisticamente significativas no tamanho das partículas. Isso foi possível, pois os resíduos apresentaram distribuição normal. O modelo foi testado estatisticamente por

ANOVA e pelo teste F de Fischer com intervalo de confiança de 90,0%. O modelo foi estatisticamente significativo e preditivo, pois o  $F_{\text{calc}}$  para a regressão, 4,75, foi maior que o  $F_{\text{tab}}$ , 2,72. Ele também pode ser considerado preditivo, pois o  $F_{\text{calc}}$  para a falta de ajuste, 7,37, foi menor do que o  $F_{\text{tab}}$ , 9,29, ou seja, a falta de ajuste não é significativa. O coeficiente de determinação ( $R^2$ ) foi igual a 85,9%. Todavia, é importante salientar que as variáveis independentes no modelo devem estar em valores codificados e ele é válido para os limites experimentais utilizados neste estudo.

$$D_{50v} = 342,01 + 0,07Q_{\text{lig}} - 9,37Q_{\text{lig}}^2 - 7,45T_{\text{ar}} + 0,99T_{\text{ar}}^2 + 14,98C_{\text{lig}} - 16,24C_{\text{lig}}^2 - 7,83Q_{\text{lig}} \cdot T_{\text{ar}} + 17,73Q_{\text{lig}} \cdot C_{\text{lig}} - 5,21T_{\text{ar}} \cdot C_{\text{lig}} \quad 4.3$$

#### 4.7.1.1 Efeito da concentração da solução ligante

De maneira geral, os ensaios com solução ligante mais concentrada apresentaram maior taxa de crescimento da partícula e, conseqüentemente, maior  $D_{50v}$  final. Isso também é demonstrado na significância do efeito linear positivo da  $C_{\text{lig}}$  apresentado na Figura 4.19. No entanto, para aqueles ensaios com menor vazão de ligante (1,5 mL/min), a influência da concentração da solução ligante no  $D_{50v}$  foi inversa. Nessa vazão de ligante, o aumento da  $C_{\text{lig}}$  resultou em uma diferença no valor do  $D_{50v}$  final muito pequena, sendo que os ensaios com concentração mais baixa produziram partículas maiores. Esse comportamento é demonstrado pela significância do efeito da interação entre a  $C_{\text{lig}}$  e  $Q_{\text{lig}}$  (interação 1 e 3).

As cinéticas de crescimento do grânulo e a evolução da umidade do material para ensaios que diferiram apenas na  $C_{\text{lig}}$  e foram realizados com  $Q_{\text{lig}}$  iguais a 3,0 mL/min e 2,3 mL/min são apresentadas na Figura 4.20 (a) e (b), respectivamente. Nesses casos, é possível observar que, inicialmente, a taxa de crescimento do grânulo permaneceu bem similar, com curvas praticamente sobrepostas, para as condições com diferentes concentrações. Mas, a partir de certo ponto, os ensaios com soluções mais concentradas proporcionaram maior taxa de crescimento do grânulo, o que resultou, ao final do processo, em maiores valores de  $D_{50v}$ . É possível perceber também que quanto maior foi a variação na  $C_{\text{lig}}$ , mais rápida foi a diferenciação entre as cinéticas de crescimento. Quando a  $C_{\text{lig}}$  aumentou de 0,7 % para 24,0 %, as curvas se diferenciaram a partir de, aproximadamente, 15 minutos de aspersão de ligante (Figura 4.20 (b)), e, quando a  $C_{\text{lig}}$  aumentou de 5,6 % para 20,0%, as curvas se diferenciaram com, aproximadamente, 25 minutos de aspersão de ligante (Figura 4.20 (a)).

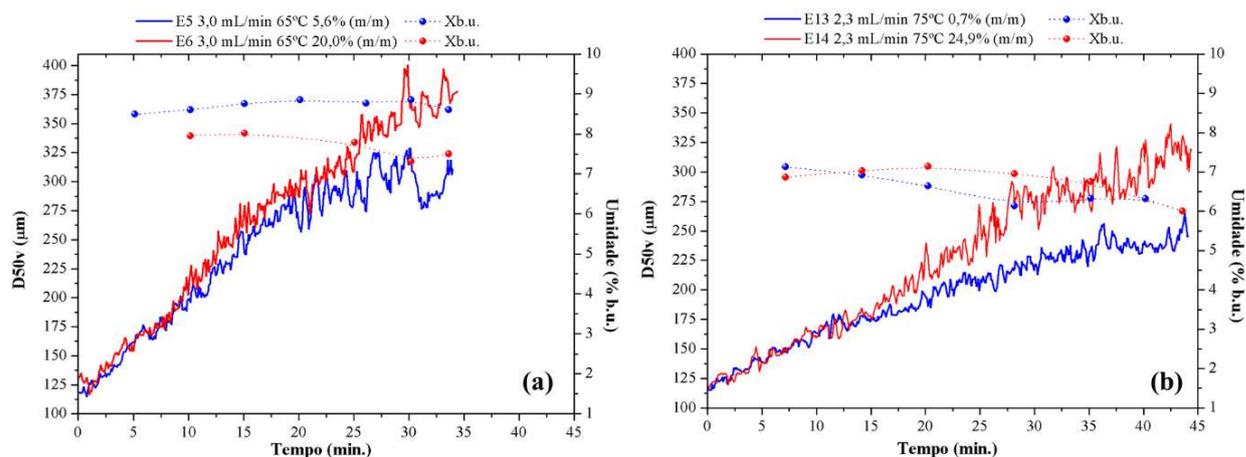


Figura 4.20: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios (a) 5 e 6 e (b) 13 e 14.

Conforme mostrado no item 4.2, as soluções de maiores concentrações de goma arábica apresentaram maiores valores para a viscosidade aparente. A coalescência entre as partículas é favorecida pelo aumento da viscosidade da solução ligante, já que soluções mais viscosas são capazes de dissipar maiores quantidades de energia cinética oriunda do choque entre partículas favorecendo que elas permaneçam unidas após o choque (Ennis et al., 1991 e Tan et al., 2006). Sendo assim, o aumento da  $C_{\text{lig}}$  e, conseqüentemente, o aumento da viscosidade da solução ligante favoreceu a coalescência entre as partículas resultando em maior taxa de crescimento. Além disso, a estabilidade das pontes líquidas nos grânulos úmidos formados por soluções mais viscosas é maior e quanto maior a  $C_{\text{lig}}$ , maior será a quantidade de sólidos disponíveis para formação das pontes sólidas. Essa constatação é reforçada pelo fato de que o menor valor de  $D_{50v}$  observado foi justamente para a menor concentração, 0,7% (m/m), solução que tem características mais próximas as da água. Como visto no item 4.6, a utilização de água como ligante proporcionou menor crescimento. O efeito positivo do aumento da concentração de soluções de goma arábica também foi observado por Hirata (2015) no processo de aglomeração de pectina em leito fluidizado pulsado.

A sonda Parsum coleta informações sobre distribuição de tamanho das partículas e dispõe os dados de acordo com peneiras da série *Tyler*. Neste estudo, as frações retidas (% volume) foram medidas e armazenadas ao longo do tempo para as seguintes classes de tamanho de partícula:  $d_p < 75 \mu\text{m}$ ,  $75 < d_p < 150 \mu\text{m}$ ,  $150 < d_p < 250 \mu\text{m}$ ,  $250 < d_p < 300 \mu\text{m}$ ,  $300 < d_p < 350 \mu\text{m}$ ,  $350 < d_p < 420 \mu\text{m}$ ,  $420 < d_p < 500 \mu\text{m}$ ,  $500 < d_p < 600 \mu\text{m}$ ,  $600 < d_p < 710 \mu\text{m}$ ,

$710 < d_p < 850 \mu\text{m}$  e  $d_p > 850 \mu\text{m}$ . Em decorrência dos resultados obtidos e para facilitar a visualização optou-se por agrupá-las em três classes sendo: finos ( $d_p < 150 \mu\text{m}$ ), intermediários ( $150 \leq d_p < 300 \mu\text{m}$ ) e grossos ( $300 \leq d_p < 850 \mu\text{m}$ ) assim como fez Andreola (2017). Esses dados foram utilizados para melhor compreensão dos efeitos das variáveis independentes na cinética de crescimento dos grânulos.

Nos ensaios de aglomeração que envolveram a variação da  $C_{\text{lig}}$ , com o auxílio de gráficos em escala logarítmica para a evolução do  $D_{50v}$  em função do tempo, foram observados quatro fases de crescimento de grânulos semelhantes àquelas descritas por Andreola (2017). Durante a primeira fase (I), relativamente curta em relação às demais, não ocorreu grande variação no  $D_{50v}$ . Entende-se que nessa fase ocorreu predominantemente umedecimento das partículas. A segunda fase (II) é marcada pelo aumento da fração de partículas intermediárias e ausência de partículas grossas. Acredita-se que a nucleação é o fenômeno dominante nessa fase e que a coalescência entre núcleos ocorra em menor extensão. Isso resulta em crescimento da partícula, mas a uma taxa ainda pequena. Na terceira fase (III) ocorreu principalmente o surgimento de partículas grossas e aumento constante da fração dessas partículas, resultando na fase com maior taxa de crescimento. Atribui-se essa observação à coalescência entre as partículas, uma vez que as partículas grossas provavelmente são oriundas da coalescência entre as partículas intermediárias. A quarta fase (IV) apresentou-se com um período em que ocorreu estabilização no tamanho da partícula devido a consolidação dos grânulos ou a sua redução em decorrência do atrito e quebra. A fase IV foi observada apenas para algumas condições.

A Figura 4.21 apresenta a evolução das três classes de partículas para os ensaios com extremos de  $C_{\text{lig}}$ , ensaios 13 e 14, comportamento semelhante foi observado para as comparações entre os ensaios 5 e 6 e ensaios 7 e 8. Pela análise da Figura 4.21, é possível perceber que, até aproximadamente dez minutos de processo, a alteração na proporção das três classes de tamanho e a duração das fases I e II foi semelhante para as duas condições. Entretanto, a partir dos dez minutos de processo, as alterações nas frações de classes de tamanho de partículas e o perfil da fase III foram diferentes de acordo com a  $C_{\text{lig}}$  utilizada.

No ensaio com  $C_{\text{lig}}$  mais baixa, ensaio 13 (2,3 mL/min, 75°C e 0,7% (m/m)), durante a fase III, a fração de partículas finas diminuiu, a fração de partículas intermediárias manteve-se constante e a taxa de surgimento de partículas grossas foi menor. Esse comportamento indica equilíbrio entre os fenômenos de nucleação de partículas finas para formação de partículas

intermediárias e coalescência entre essas partículas para formação de partículas grossas que ocorre de maneira moderada. No ensaio com  $C_{lig}$  mais alta, ensaio 14 (2,3 mL/min, 75°C e 24,9% (m/m)), durante a fase III, a redução de finos foi mais expressiva, a fração de partículas intermediárias diminuiu e o aumento na fração de partículas grossas foi mais acentuado, o que indica que a solução mais concentrada possibilita maior taxa de coalescência de modo que a taxa de formação de partículas grossas é maior que a taxa de nucleação e união entre partículas finas para formação de partículas intermediárias. Esse fenômeno é evidente na Figura 4.20 em que a solução mais concentrada e mais viscosa proporcionou maior taxa de formação de grânulos e formação de partículas maiores.

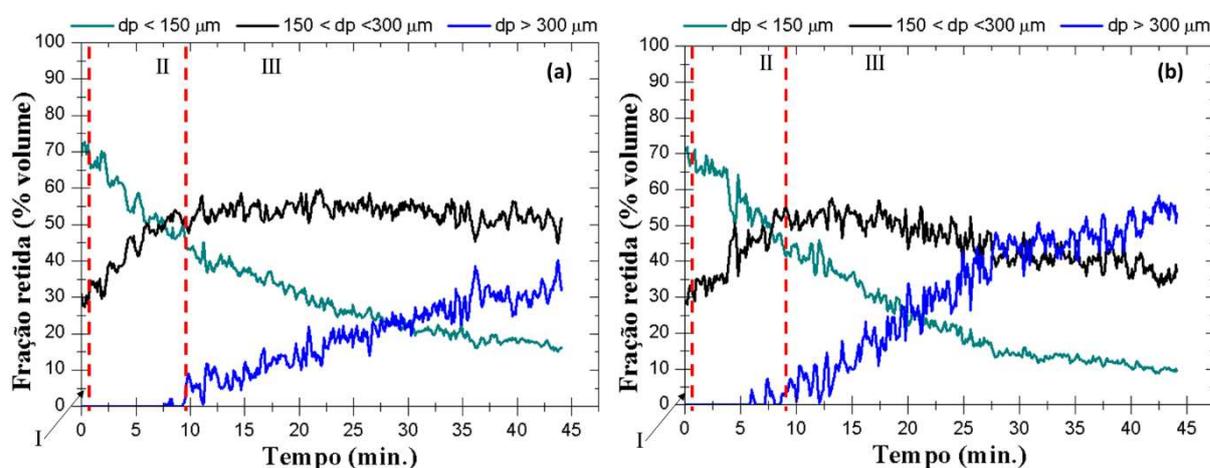


Figura 4.21: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $C_{lig}$  (a) ensaio 13 (2,3 mL/min, 75°C e 0,7% (m/m)) e (b) ensaio 14 (2,3 mL/min, 75°C e 24,9% (m/m)).

Não foi observada, contudo, a mesma influência da  $C_{lig}$  na cinética de crescimento do grânulo e no  $D_{50v}$  final para os ensaios com vazão igual 1,5 mL/min. As cinéticas de crescimento do grânulo para esses ensaios são apresentadas na Figura 4.22 (a) e (b) e, apesar da variação na  $C_{lig}$ , as curvas apresentam-se praticamente sobrepostas e os valores de  $D_{50v}$  finais foram muito próximos.

Vários fatores podem afetar a força de adesão entre as partículas e, conseqüentemente, o crescimento do grânulo, entre eles estão a viscosidade da solução ligante e os parâmetros interfaciais que envolvem a tensão interfacial do líquido e o ângulo de contato entre o agente ligante e o sólido (Hemati et al., 2003). A ausência de influência da  $C_{lig}$  sobre o  $D_{50v}$  para a condição de baixa vazão de ligante pode estar relacionada à baixa disponibilidade

de ligante e, dessa forma, os efeitos das características dos ligantes foram menos expressivos. Como a variação na tensão superficial e no ângulo de contato foram pequenas, conforme apresentado no item 4.2, o tamanho final da partícula obtidos foi muito próximo para as diferentes soluções ligantes.

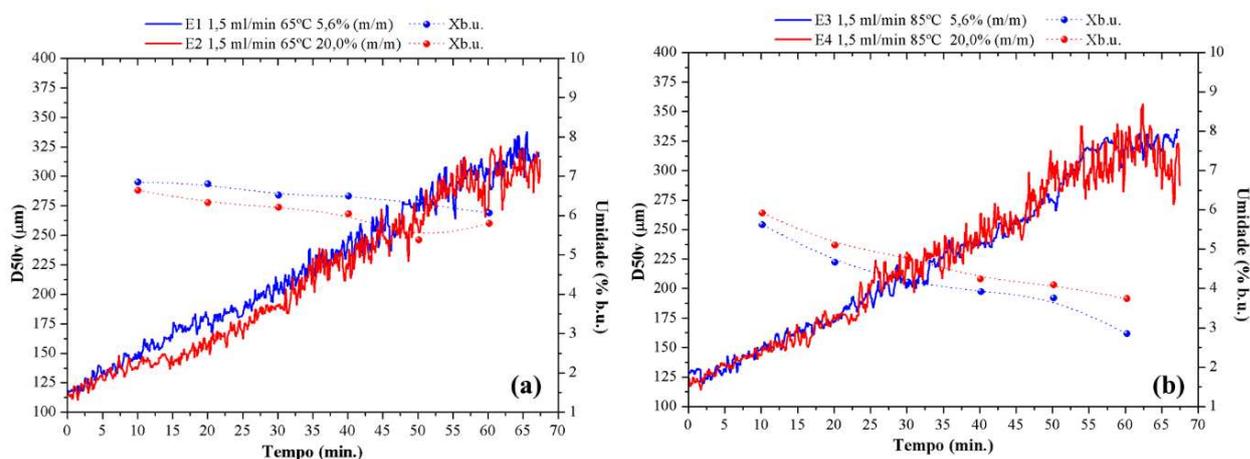


Figura 4.22: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios (a) Ensaio 1 e Ensaio 2 e (b) Ensaio 3 e Ensaio 4.

A Figura 4.23 apresenta a evolução das frações de finos ( $d_p < 150 \mu\text{m}$ ), partículas intermediárias ( $150 < d_p < 300 \mu\text{m}$ ) e partículas grossas ( $d_p > 300 \mu\text{m}$ ) para os ensaios 1 (1,5 mL/min, 65°C e 5,6% (m/m)) e 2 (1,5 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)). Nota-se que, assim como as cinéticas de crescimento apresentadas na Figura 4.22 (a) a alteração nas frações de partículas de diferentes classes de tamanho foi semelhante para as três fases de crescimento. Diferentemente do que ocorreu na comparação entre os ensaios com  $Q_{\text{lig}}$  iguais a 2,3 e 3,0 mL/min, a similaridade entre o perfil das três fases de crescimento indica que a intensidade da nucleação, coalescência e consolidação quando a  $Q_{\text{lig}}$  é baixa independem da  $C_{\text{lig}}$ .

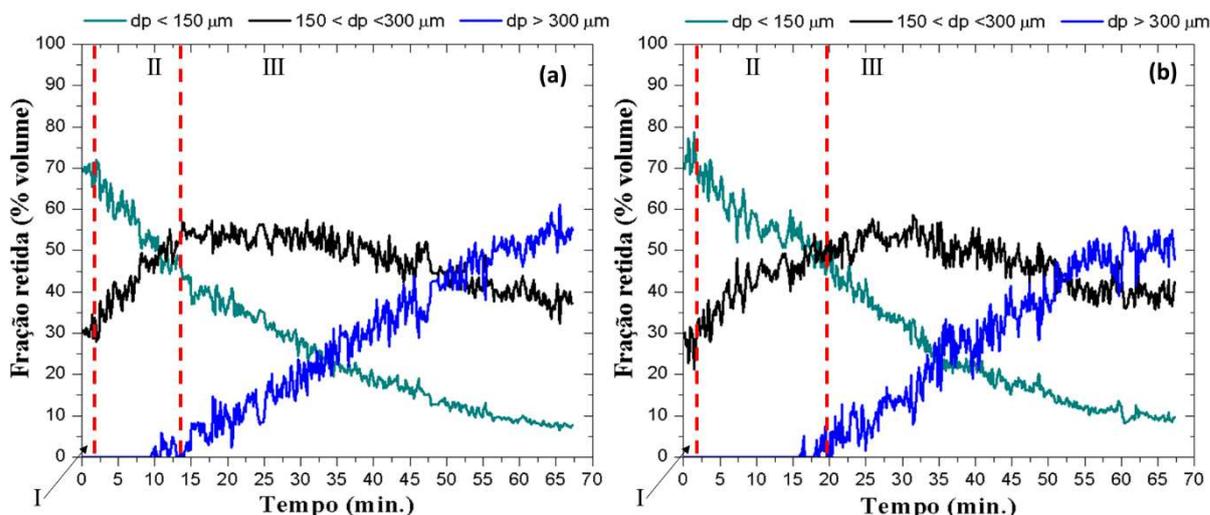


Figura 4.23: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $C_{lig}$  (a) ensaio 1 (1,5 mL/min, 65°C e 5,6% (m/m)) e (b) ensaio 2 (1,5 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)).

Superfícies de resposta foram construídas a partir do modelo ajustado aos dados experimentais. As superfícies de resposta que envolvem a variável  $C_{lig}$  e demonstram o seu efeito sobre o  $D_{50v}$ , de acordo com o modelo proposto, são apresentadas na Figura 4.24.

O comportamento do  $D_{50v}$  em função da  $C_{lig}$  e da  $Q_{lig}$  pode ser observado na Figura 4.24 (a). Essa superfície apenas comprova o que foi discutido anteriormente. O tamanho final das partículas é pouco influenciado pela variação da  $C_{lig}$ , quando o nível da variável  $Q_{lig}$  utilizada é inferior a 0 (2,3 mL/min). Entretanto, para níveis de  $Q_{lig}$  acima desse valor, a variação na  $C_{lig}$  exerce maior efeito sobre o  $D_{50v}$ . Isso porque, em maiores vazões, maior quantidade de ligante está disponível na superfície das partículas e maior será o efeito da variação das suas características no fenômeno de aglomeração. Além disso, em maiores vazões ocorre maior umedecimento das partículas sendo necessário, para formação e consolidação dos grânulos formados, que as pontes líquidas formadas entre elas sejam mais estáveis, o que é alcançado com soluções mais concentradas e, portanto, mais viscosas.

Os efeitos de  $T_{ar}$  e  $C_{lig}$  no  $D_{50v}$  são mostrados na Figura 4.24 (b). A influência da  $C_{lig}$  é maior quando a  $T_{ar}$  está em níveis mais baixos. Conforme a  $T_{ar}$  aumenta a influência da concentração no tamanho médio final diminui. Essa observação também pode estar relacionada à disponibilidade de solução ligante para aglomeração das partículas. Em maiores temperaturas ocorre a evaporação mais rápida da água, restando apenas o sólido na superfície das partículas havendo, assim, menor tempo disponível para a formação de pontes líquidas e aglomeração

das partículas. Assim sendo, o efeito das características da solução ligante na cinética de crescimento dos grânulos e no seu tamanho final é reduzido em altas temperaturas.

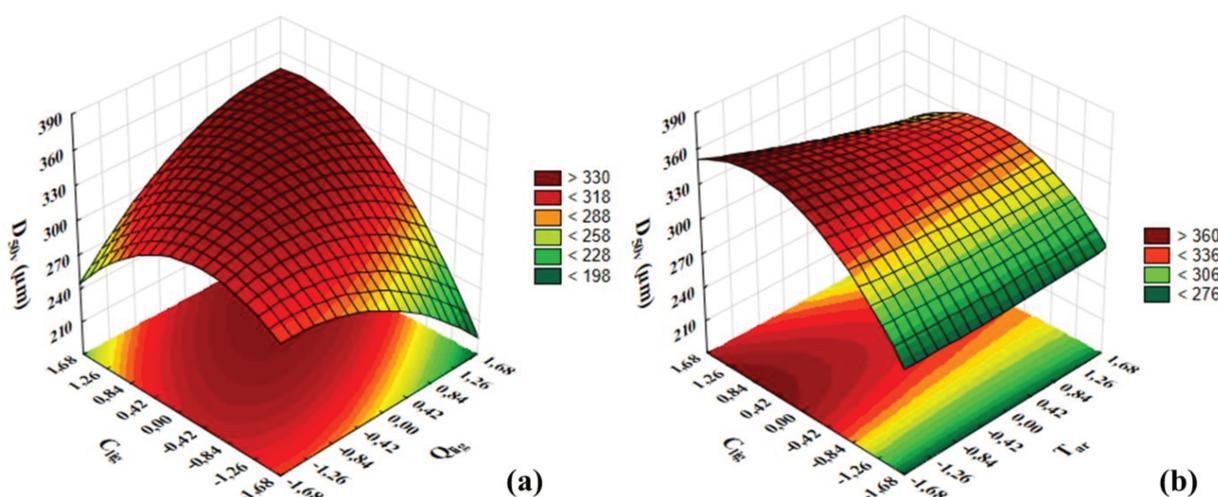


Figura 4.24: Superfícies de resposta para  $D_{50v}$  em função da  $C_{lig}$  e  $Q_{lig}$  (a) e da  $C_{lig}$  e  $T_{ar}$  (b). A variável não apresentada na superfície de resposta foi mantida no nível 0.

#### 4.7.1.2 Efeito da vazão de ligante

O efeito da  $Q_{lig}$  no  $D_{50v}$  final variou de acordo com o nível da variável  $C_{lig}$ , como pode ser visto pelos dados apresentados na Tabela 4.10. O aumento da  $Q_{lig}$  para condições de baixa  $C_{lig}$  (5,6 e 12,8% (m/m)) resultou em diminuição do valor de  $D_{50v}$ . Já para os ensaios com  $C_{lig}$  igual a 20,0% (m/m) o aumento da  $Q_{lig}$  favoreceu o aumento do tamanho de partícula. Esse comportamento pode ser observado pela comparação entre os valores de  $D_{50v}$  para ensaios 3 e 7 e ensaios 4 e 8, por exemplo, e é refletido na Figura 4.19, onde o efeito quadrático da  $Q_{lig}$  e a sua interação com  $C_{lig}$  mostraram-se significativos.

O crescimento das partículas é influenciado pela viscosidade da solução ligante após a formação dos grânulos e o tempo permitido para a consolidação das pontes formadas (Tardos et al., 1997) e maior umidade relativa do ar no leito favorece a granulação (Hemati et al., 2003). Nas condições estudadas, o aumento da  $C_{lig}$  aumentou a viscosidade dessas soluções e o aumento da  $Q_{lig}$ , mantendo-se as outras condições constantes, resultou em maior umidade relativa do leito. Para o processo de aglomeração em análise, percebeu-se a influência desses fatores no tamanho final da partícula.

Como o volume total de ligante foi mantido fixo, durante este estudo, ensaios com diferentes vazões de ligante tiveram diferentes tempos de processamento. Por esse motivo,

optou-se por analisar o efeito da  $Q_{lig}$  na cinética de crescimento e no valor de  $D_{50v}$  construindo-se gráficos com  $D_{50v}$  em função do tempo relativo de ensaio, sendo o volume de ligante adicionado o mesmo para o mesmo tempo relativo.

Cinéticas de crescimento do grânulo em termos do  $D_{50v}$  para ensaios em que foram utilizadas soluções com  $C_{lig}$  mais baixas (5,6 e 12,8% (m/m)) são apresentadas na Figura 4.25. Nesses casos, a taxa de crescimento do grânulo foi praticamente a mesma para diferentes  $Q_{lig}$  até que aproximadamente 60,0% do volume de ligante fosse adicionado. A partir desse momento, os ensaios com menor  $Q_{lig}$  proporcionaram taxa de crescimento ligeiramente maior até o final do processo e como resultado os seus produtos apresentaram  $D_{50v}$  final maior. Quando maior  $Q_{lig}$  é utilizada, mantendo-se a temperatura do ar de fluidização constante, haverá maior disponibilidade de solução de ligante e o umedecimento das partículas ocorre de maneira mais acentuada. O rápido umedecimento das partículas com soluções menos viscosas, com menor capacidade de amortecer a energia cinética do choque entre elas, pode tornar a coalescência entre elas menos efetiva. Além disso, sob maior  $Q_{lig}$  e condições mais úmidas a formação das pontes sólidas é mais lenta sendo os grânulos mais frágeis e suscetíveis a quebra, o que reduz o crescimento da partícula.

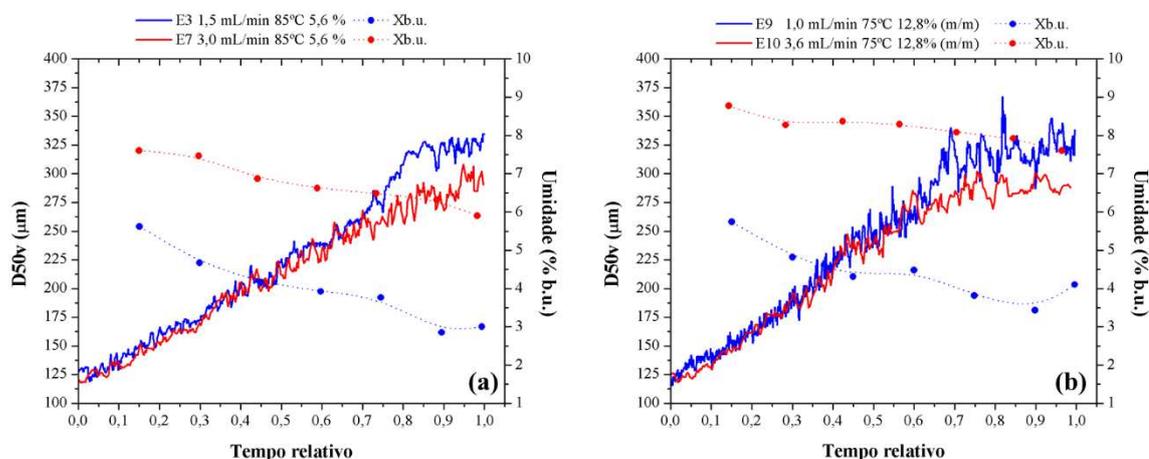


Figura 4.25: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaio 3 e 7 (a) e para os ensaios 9 e 10 (b).

O aumento da  $Q_{lig}$  também resultou em diminuição do  $D_{50v}$  durante a aglomeração de proteína de arroz utilizando soluções de glucomanana como ligante (Andreola et al., 2018). Os autores atribuíram esse resultado a uma relação controlada entre o umedecimento e secagem das partículas, quando menor  $Q_{lig}$  é utilizada, de modo a favorecer a taxa de crescimento.

A menor taxa de coalescência entre partículas intermediárias para formação de partículas grossas, em condições de alta  $Q_{lig}$  e baixa  $C_{lig}$ , pode ser analisada com base na evolução das frações de partículas finas, intermediárias e grossas para o ensaio 9 (1,0 mL/min, 75°C e 12,8% (m/m)), Figura 4.26 (a), e para o ensaio 10 (3,6 mL/min 75°C e 12,8% (m/m)), Figura 4.26 (b). Nesses ensaios, as duas fases iniciais de crescimento foram similares, havendo diferenças nas fases III e IV. O ensaio 9 apresentou uma fase de crescimento III mais extensa até que aproximadamente 80,0% do ligante fosse adicionado e, nessa fase, a taxa de aumento da fração de partículas grossas foi maior do que no ensaio 10, o que indica que a formação de partículas grossas foi mais estável e mais intensa sob condições menos úmidas. O ensaio 10, condição mais úmida, apresentou uma fase IV, de consolidação mais extensa e os grânulos formados tiveram menor tamanho, sendo que as frações de partículas intermediárias e grossas se estabilizaram em proporções aproximadas. Para o ensaio 9, a consolidação dos grânulos só ocorreu quando havia maior fração de partículas grossas em relação às partículas intermediárias, um reflexo da maior estabilidade dos grânulos sob condições menos úmidas, e o que resultou em maior  $D_{50v}$  final.

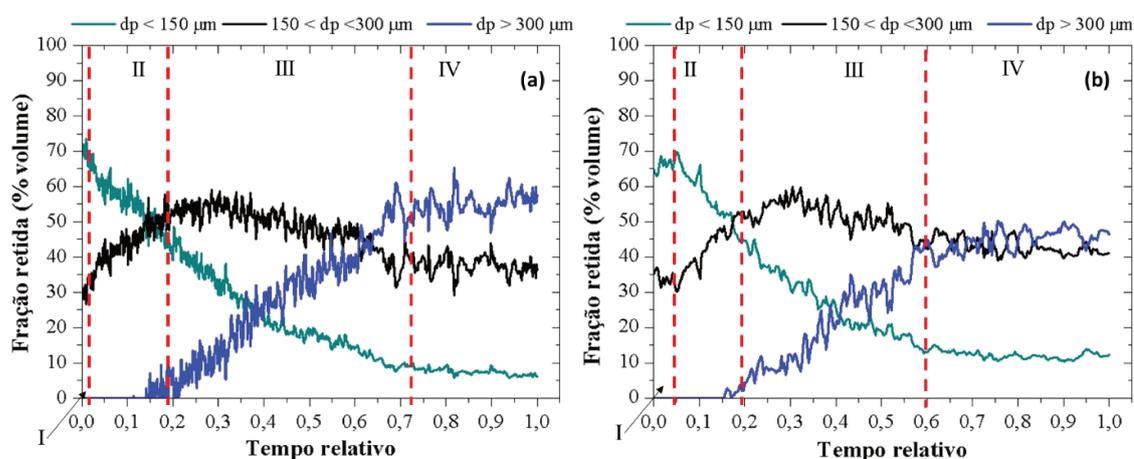


Figura 4.26: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $Q_{lig}$  (a) ensaio 9 (1,0 mL/min, 75°C e 12,8% (m/m)) e (b) ensaio 10 (3,6 mL/min, 75°C e 12,8% (m/m)).

As cinéticas de crescimento da partícula e a evolução da umidade para os ensaios em que foi utilizada solução com concentração mais alta (20,0% (m/m)) são mostradas na Figura 4.27. Nesses ensaios, o aumento na  $Q_{lig}$  proporcionou maior valor de  $D_{50v}$ , mas o efeito da  $Q_{lig}$  na cinética de crescimento foi diferente de acordo com a  $T_{ar}$  utilizada, como pode ser observado na Figura 4.27.

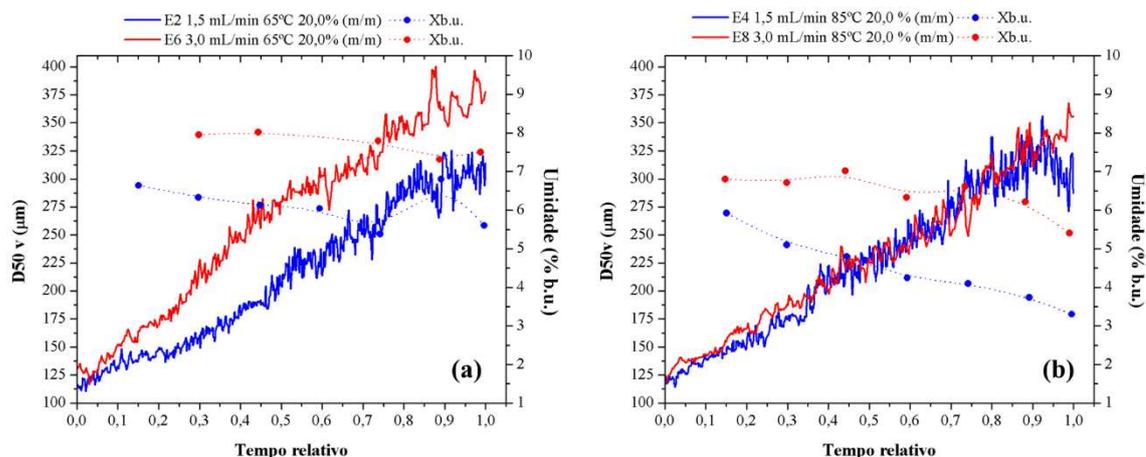


Figura 4.27: Cinética de crescimento do D<sub>50v</sub> e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios 2 e 6 (a) e ensaios 4 e 8 (b).

Quando o efeito da  $Q_{lig}$  foi analisado para os ensaios com maior  $C_{lig}$  e  $T_{ar}$  no nível -1 (65 °C), Figura 4.27 (a), percebeu-se que a mais rápida inserção de ligante, em baixa temperatura, proporcionou maior taxa de crescimento da partícula durante todo o processo. Ou seja, quando o umedecimento mais rápido das partículas é associado a utilização de um ligante mais viscoso, as pontes líquidas formadas são mais estáveis e mesmo não havendo a rápida formação de pontes sólidas, em função da baixa temperatura, é possível a consolidação de partículas com maior tamanho.

Todavia, quando o efeito da  $Q_{lig}$  foi analisado para os ensaios com maior  $C_{lig}$  e  $T_{ar}$  no nível +1 (85 °C), Figura 4.27 (b), o ensaio com maior  $Q_{lig}$  só apresentou maior taxa de crescimento nos momentos finais do processo. Esse comportamento pode estar relacionado a alta taxa de evaporação, sendo menor a disponibilidade de ligante na superfície da partícula mesmo para alto valor de  $Q_{lig}$ . A pequena diferença na taxa de crescimento observada ao final do processo foi decorrente da quebra de grânulos para o ensaio 4, de menor  $Q_{lig}$ , que produziu aglomerados com menor umidade e por isso mais frágeis.

A produção de grânulos frágeis quando baixa  $Q_{lig}$  é associada a alta  $T_{ar}$  vai de encontro ao observado para a aglomeração de proteína de arroz com alginato de sódio. É relatado que os grânulos formados em baixa temperatura do ar e alta vazão de ligante foram mais resistentes de modo que, ao final do processo, apresentaram maior valor de tamanho médio (Andreola, 2017). Comportamento semelhante também foi observado por Dacanal e Menegalli, (2010) para aglomeração de proteína de soja utilizando soluções de maltodextrina como ligante.

A Figura 4.28 apresenta a evolução da fração de partículas finas, intermediárias e grossas para os ensaios 2 (1,5 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)) e 6 (3,0 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)). Nesses ensaios apenas a fase I foi semelhante. Para o ensaio 2, durante a fase II, o aumento da fração de partículas intermediárias durou mais tempo, enquanto que para o ensaio 6 foi mais intenso e, com apenas 10,0% do processo decorrido já surgiram partículas grossas, ou seja, deu-se início a fase III. Durante a fase III, a redução das partículas intermediárias e o aumento das partículas grossas também foram mais intensos para o ensaio 6, maior  $Q_{lig}$ . Esse ensaio não apresentou fase IV. Foi observado apenas que, durante a III, a partir de certo ponto, a taxa de crescimento das partículas grossas diminuiu, mas continuou positiva. No ensaio 2, ocorreu a fase IV de crescimento em que a fração das três classes de partículas apresentou uma tendência a permanecer constante. Isso demonstra que, no ensaio de maior  $Q_{lig}$ , quando foi utilizada a solução mais concentrada e observada maior disponibilidade de ligante na superfície da partícula, a coalescência de partículas foi favorecida o que possibilitou maior aumento no  $D_{50v}$ .

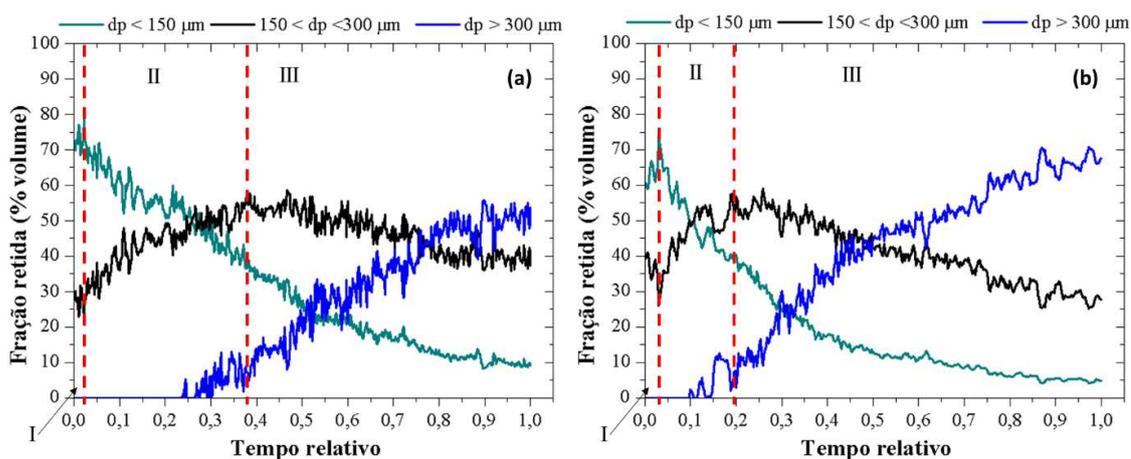


Figura 4.28: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $Q_{lig}$  (a) ensaio 2 (1,5 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)) e (b) ensaio 6 (3,0 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)).

A superfície de resposta apresentada na Figura 4.24 (a), construída de acordo com o modelo proposto (Equação 4.3), mostra essa inversão no efeito da vazão de ligante de acordo com a concentração da solução. A superfície de resposta para o  $D_{50v}$  do produto aglomerado em função da  $T_{ar}$  e da  $Q_{lig}$  é apresentado na Figura 4.29. O aumento da vazão de ligante proporciona maior tamanho de partícula quando a temperatura é mantida em níveis abaixo do

nível central. Para temperaturas acima desse valor, o nível central da vazão de ligante é o que produz grânulos maiores.

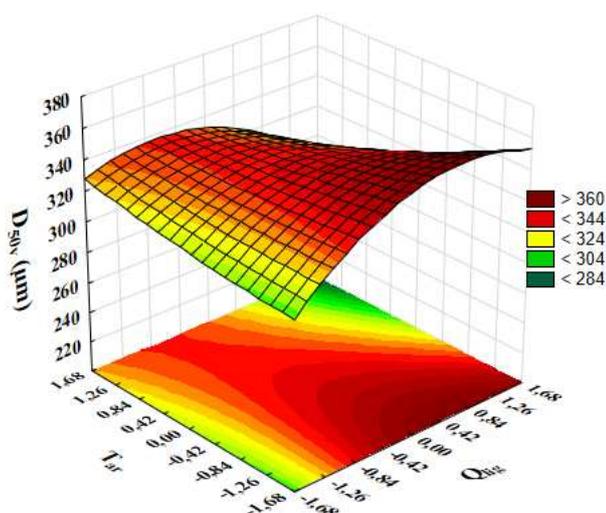


Figura 4.29: Superfície de resposta para  $D_{50v}$  em função da  $T_{ar}$  e  $Q_{lig}$ . A  $C_{lig}$  foi mantida no nível central (0).

#### 4.7.1.3 Efeito da temperatura do ar de fluidização

A temperatura do ar de fluidização, dentre as variáveis independentes, foi a que menos influenciou a cinética de crescimento dos grânulos e o  $D_{50v}$  final (Tabela 4.10). De maneira geral, menores temperaturas resultaram em maior tamanho de partícula como pode ser visto pela comparação entre os ensaios dos pontos axiais com relação a  $T_{ar}$ . O ensaio 11 ( $T_{ar}$  igual a 58°C) produziu partículas com  $D_{50v}$  igual a  $354,0 \pm 4,6$  ( $\mu m$ ) enquanto o ensaio 12 ( $T_{ar}$  igual a 92°C) produziu partículas com o  $D_{50v}$  igual a  $318,9 \pm 4,3$  ( $\mu m$ ). Resultado semelhante foi encontrado por (Hirata, 2015) para aglomeração de pectina utilizando soluções de goma arábica como ligante e por (Andreola, 2017) para a aglomeração de proteína de arroz. Esse comportamento também está representado na Figura 4.19, em que o efeito linear da  $T_{ar}$  se apresenta como significativo e negativo. A partir dos dados apresentados na Tabela 4.10, é possível observar também que o efeito da  $T_{ar}$  foi maior quando utilizada uma  $Q_{lig}$  mais alta, 3,0 mL/min, o que está representado na Figura 4.19 pelo efeito significativo da interação entre  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$ , interação 1 e 2.

Cinéticas de crescimento de grânulos para ensaios em que houve variação apenas na  $T_{ar}$  e, para diferentes níveis de  $Q_{lig}$  são apresentadas na Figura 4.30. É possível observar que à medida que a  $Q_{lig}$  aumenta, aumenta também o efeito da  $T_{ar}$  sobre a taxa de crescimento do

grânulo. Nos ensaios em que a  $Q_{lig}$  foi mantida no nível -1 (1,5 mL/min), Figura 4.30 (a), as cinéticas de crescimento para diferentes temperaturas foram muito semelhantes e, portanto, o  $D_{50v}$  final também. Os valores de  $D_{50v}$  final foram  $312,7 \pm 3,9$  ( $\mu\text{m}$ ) para o ensaio 2 ( $T_{ar}$  igual a  $65^\circ\text{C}$ ) e  $310,1 \pm 11,4$  ( $\mu\text{m}$ ) para o ensaio 4 ( $T_{ar}$  igual a  $85^\circ\text{C}$ ). Nos ensaios em que a vazão de ligante foi mantida no nível 0 (2,3 mL/min), Figura 4.30 (b), as cinéticas de crescimento também foram semelhantes. Entretanto, o ensaio 11 ( $T_{ar}$  igual a  $58^\circ\text{C}$ ) apresentou taxa de crescimento levemente maior do que o ensaio 12 ( $T_{ar}$  igual a  $92^\circ\text{C}$ ). Isso resultou na diferença entre os valores de  $D_{50v}$  citada no parágrafo anterior. A maior diferença entre as cinéticas de crescimento e entre os valores de  $D_{50v}$  final foi observada para os ensaios com maior  $Q_{lig}$  como apresentado na Figura 4.30 (c). O ensaio de menor  $T_{ar}$ , ensaio 6, apresentou crescimento grânulo mais pronunciado desde o início do processo.

O comportamento observado pode estar relacionado à extensão da zona ativa de umedecimento de acordo com a vazão de ligante utilizada. Segundo Jimenez et al. (2006), a zona de umedecimento é caracterizada por altos gradientes de umidade e temperatura e só ocorrerá a aglomeração caso a partícula penetre nesta zona e tenha a sua superfície umedecida. Essa zona será tão maior quanto maior for a  $Q_{lig}$  utilizada (Heinrich et al., 2003). Sendo assim, em baixas vazões, menor é a extensão da zona de umedecimento e menor será o volume de material suscetível a diferença na taxa de evaporação de acordo com a temperatura utilizada. O efeito do aumento da taxa de evaporação com o aumento da temperatura será, dessa forma, menos pronunciado. À medida que a  $Q_{lig}$  aumenta e ocorre o aumento da zona de umedecimento, o efeito do aumento na taxa de evaporação decorrente do aumento na  $T_{ar}$  é mais pronunciado. Nesse caso, na condição de menor temperatura, o crescimento dos grânulos será mais acentuado.

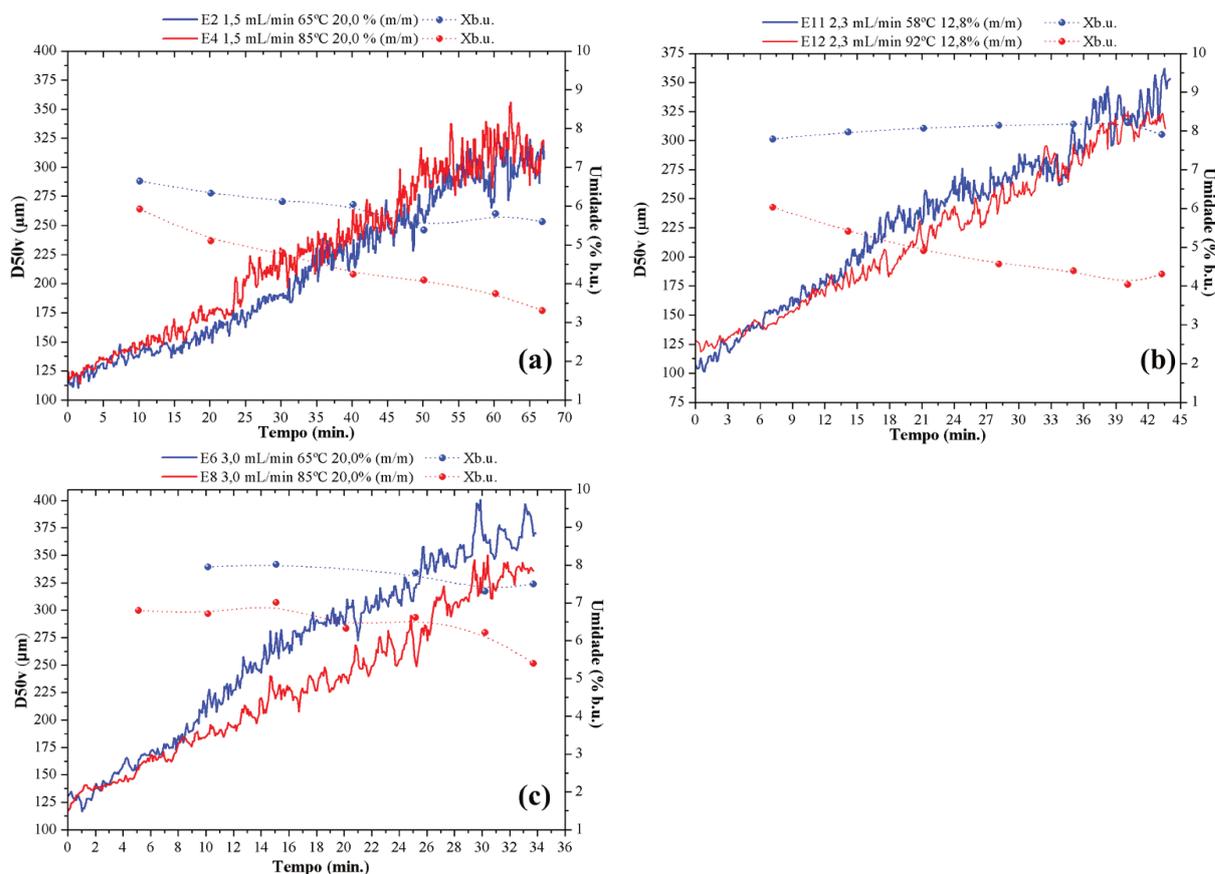


Figura 4.30: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó para os ensaios (a) 2 e 4, (b) 11 e 12 e (c) 6 e 8.

Uma análise da evolução das frações de classes de partículas mostra que de fato o perfil das fases de crescimento foi similar para diferentes  $T_{ar}$ . A Figura 4.31 apresenta esta evolução para os ensaios 6 (3,0 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)) e 8 (3,0 mL/min, 85°C e 20,0% (m/m)). O perfil das três fases de crescimento é o mesmo para as duas condições. Todavia, o ensaio 6 apresentou redução na fração de partículas intermediárias e aumento na fração de partículas grossas ligeiramente maiores. Ou seja, a taxa de coalescência foi ligeiramente maior para a condição de menor  $T_{ar}$  em decorrência da menor taxa de evaporação e consequentemente maior disponibilidade de ligante.

A pequena influência da temperatura no  $D_{50v}$  pode ser visualizada nas superfícies de respostas que incluem esta variável independente. Na Figura 4.24 (b), que apresenta a superfície de resposta para  $C_{lig}$  e  $T_{ar}$ , percebe-se que uma variação na  $T_{ar}$  tem pequena influência no  $D_{50v}$  para condições fixas de concentração. A superfície de resposta para o  $D_{50v}$  em função da  $T_{ar}$  e  $Q_{lig}$  (Figura 4.29) apresenta também pequeno efeito da variação da temperatura no  $D_{50v}$ ,

sendo este efeito mais evidente para vazões de ligante acima do nível central, como foi discutido anteriormente e comprovado nas cinéticas apresentadas na Figura 4.30.

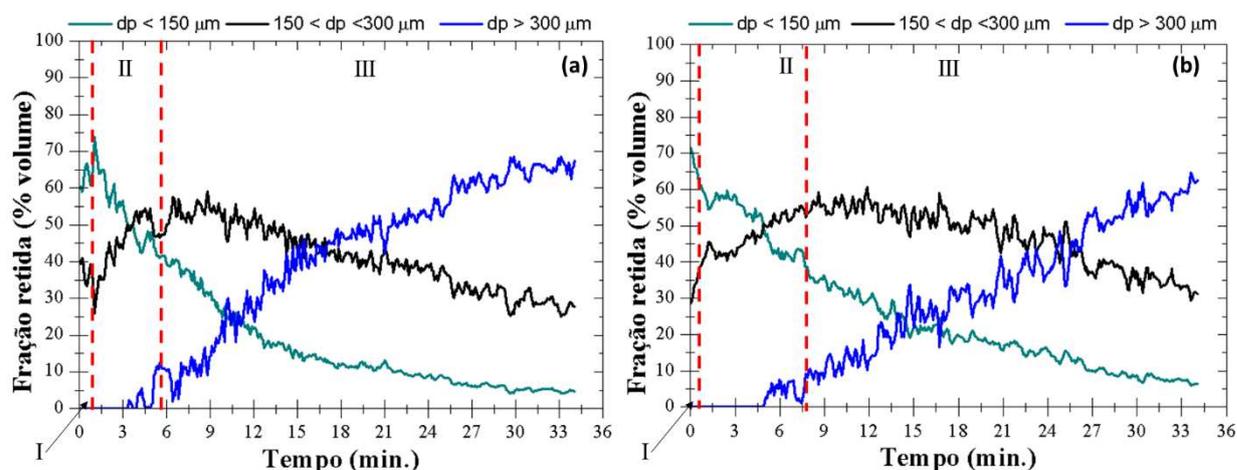


Figura 4.31: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $Q_{lig}$  (a) ensaio 6 (3,0 mL/min, 65°C e 20,0% (m/m)) e (b) ensaio 8 (3,0 mL/min, 85°C e 20,0% (m/m)).

#### 4.7.2 Rendimento do processo

As variáveis independentes  $Q_{lig}$  e a  $T_{ar}$ , dentre as variáveis estudadas, apresentaram maior influência no rendimento do processo de aglomeração de goma arábica como pode ser observado a partir dos dados apresentados na Tabela 4.10.

O aumento da  $Q_{lig}$  favoreceu o rendimento do processo, o que pode ser comprovado pela comparação entre os rendimentos obtidos para os pontos axiais em relação a  $Q_{lig}$ . O ensaio 10, que foi realizado com  $Q_{lig}$  no nível mais alto, +1,68 (3,6 mL/min), apresentou  $\eta$  igual a 71,5%, enquanto o ensaio 9, que foi realizado com  $Q_{lig}$  no nível mais baixo, -1,68 (1,0 mL/min), apresentou  $\eta$  igual a 41,7%. Além disso, de maneira geral, os ensaios com  $Q_{lig}$  igual a 3,0 mL/min apresentaram rendimentos maiores que os ensaios em que essa variável foi mantida em 1,5 mL/min. A comparação entre os ensaios dos pontos axiais em relação a  $T_{ar}$ , ensaios 11 ( $T_{ar}$  igual 58 °C) e 12 ( $T_{ar}$  igual a 92 °C), mostra que a diminuição na  $T_{ar}$  favoreceu o  $\eta$ , uma vez que o  $\eta$  para o ensaio 11 foi de 61,1% e para o ensaio 12 foi de 53,8%.

A análise estatística da significância desses efeitos na resposta  $\eta$ , por meio do gráfico de Pareto a um intervalo de confiança de 90,0%, é apresentada na Figura 4.32. Os efeitos estatisticamente significativos localizam-se à direita do limiar de significância ( $p < 0,1$ ). Todas

as variáveis independentes apresentaram efeitos estatisticamente significativos no rendimento do processo de acordo com o diagrama de Pareto.

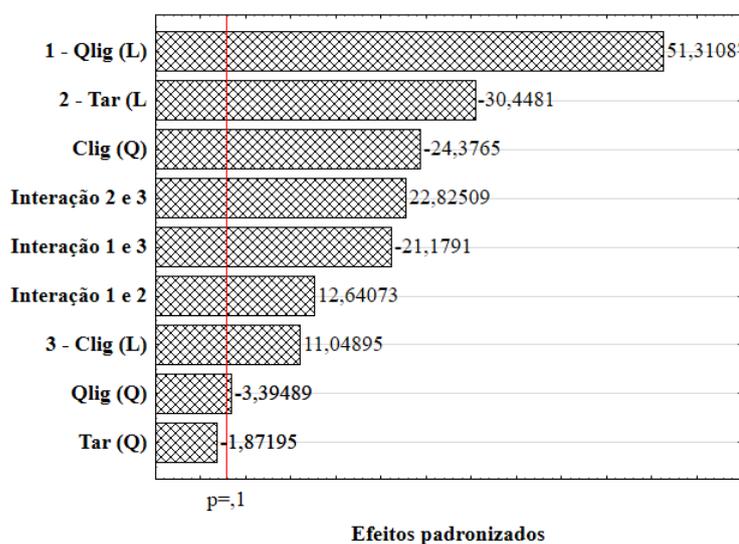


Figura 4.32: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis  $Q_{lig}$  (1),  $T_{ar}$  (2) e  $C_{lig}$  (3) no rendimento do processo de aglomeração de GA com soluções da própria goma.

A análise dos efeitos de cada uma das variáveis independentes e estatisticamente significativas será apresentada nos itens seguintes. Além dos valores observados, as superfícies de respostas construídas a partir do modelo polinomial para variáveis codificadas (Equação 4.4) também foram utilizadas nessa análise.

Isso foi possível, pois os resíduos apresentaram distribuição normal e o modelo foi testado estatisticamente por ANOVA e pelo teste F de Fischer com intervalo de confiança de 90,0%. Esse modelo foi estatisticamente significativo, uma vez que o  $F_{calc}$  para a regressão, 9,12, foi maior que o  $F_{tab}$ , 2,72. No entanto, o modelo não é preditivo, uma vez que o  $F_{calc}$  para a falta de ajuste,  $F_{calc}$ , 92,44, foi maior do que o  $F_{tab}$ , 9,29. O coeficiente de determinação ( $R^2$ ) foi igual 90,2%.

O F para a falta de ajuste é a razão entre a média quadrática dos desvios decorrentes da falta de ajuste e a média quadrática dos desvios em razão do erro puro ou erro experimental. O alto valor para o  $F_{calc}$  para a falta de ajuste é decorrente de um erro puro muito pequeno. Mesmo assim, as superfícies de resposta foram construídas para fins de análise, uma vez que o modelo foi significativo. É importante salientar que o modelo pode ser considerado apenas para os limites experimentais utilizados neste estudo.

$$\eta = 57,62 + 8,91Q_{lig} - 0,65Q_{lig}^2 - 5,29T_{ar} - 0,36T_{ar}^2 + 1,92C_{lig} - 4,66C_{lig}^2 \quad 4.4$$

$$+ 2,87Q_{lig} \cdot T_{ar} - 4,81Q_{lig} \cdot C_{lig} + 5,18T_{ar} \cdot C_{lig}$$

A formação de torrões apresentou pequeno efeito no rendimento do processo como discutido no item 0 e apresentado na Figura 4.33. Não houve um padrão de produção de torrões. É válido ressaltar que o ensaio 14, em que foi utilizada solução de goma arábica mais concentrada (24,9% (m/m)) e muito mais viscosa do que as outras, produziu uma fração de torrões expressivamente maior do que os outros ensaios (Tabela 4.4). Dado que a concentração de 25,0% foi determinada com limite nos testes preliminares devido à queda de uniformidade do *spray* formado, nesse ensaio pode ter havido uma variação no perfil do *spray* e a distribuição menos uniforme do ligante pode ter ocasionado maior formação de torrões.

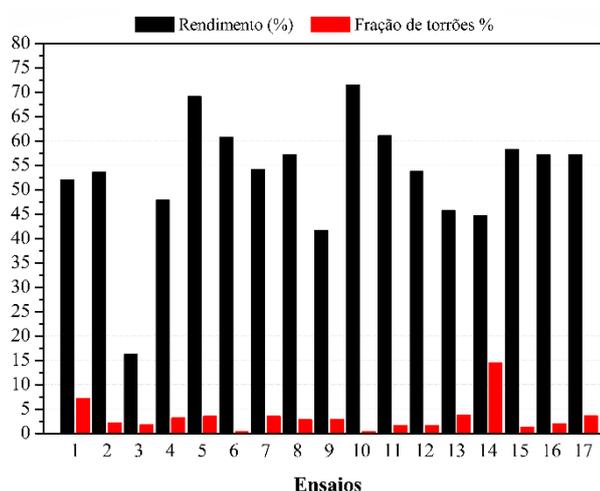


Figura 4.33: Rendimento e fração de torrões para os ensaios de aglomeração utilizando solução de goma como ligante.

#### 4.7.2.1 Efeito da vazão de ligante

A vazão de ligante foi a variável que apresentou efeito mais expressivo para a resposta rendimento do processo como mostrado na Figura 4.32. O seu efeito linear e positivo indica que maiores  $Q_{lig}$  resultam em maiores valores de  $\eta$ , esse comportamento foi de fato observado conforme dados apresentados na Tabela 4.10. Nos ensaios com maior vazão de ligante, a taxa de crescimento dos grânulos foi maior e, com o crescimento mais rápido dos grânulos, o arraste de material para o ciclone é diminuído desde os momentos iniciais do processo. A Figura 4.34 ilustra esse fato por meio da distribuição de tamanho das partículas

antes do início do processo de aglomeração e para tempo relativo igual a 20,0%, ou seja, quando 20,0% da solução ligante havia sido inserida no leito, para os ensaios 2 ( $Q_{\text{lig}}$  em 1,5 mL/min,  $T_{\text{ar}}$  em 65 °C e  $C_{\text{lig}}$  em 20,0%) e 4 ( $Q_{\text{lig}}$  em 3,0 mL/min,  $T_{\text{ar}}$  em 65 °C e  $C_{\text{lig}}$  em 20,0%).

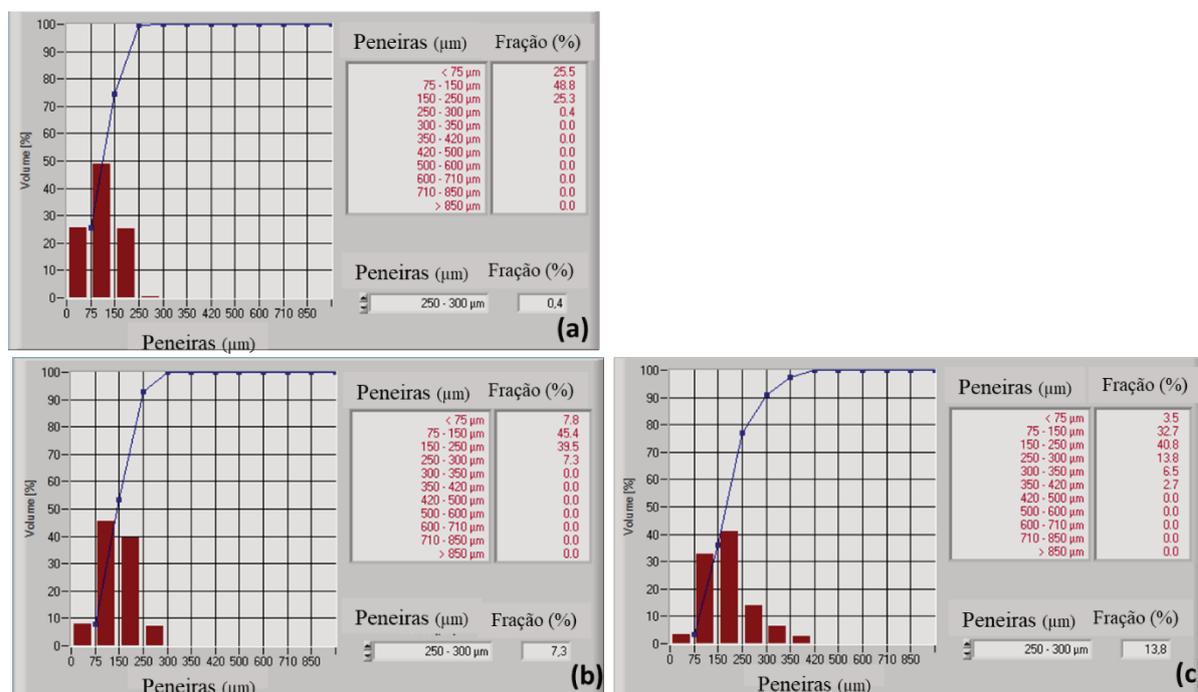


Figura 4.34: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas (a) antes do início da aglomeração pela sonda Parsum e para um tempo relativo de 20,0% para os ensaios (b) 2 e (c) 6.

Após 20,0% do tempo decorrido do processo, quando utilizada a  $Q_{\text{lig}}$  igual a 1,5 mL/min, a alteração na distribuição do tamanho das partículas foi menor do que quando utilizada  $Q_{\text{lig}}$  igual a 3,0 mL/min, mantidas as outras variáveis constantes. No ensaio de maior  $Q_{\text{lig}}$  ocorre maior redução das partículas menores que 75  $\mu\text{m}$  e das partículas com tamanho entre 75 a 150  $\mu\text{m}$  do que no ensaio com menor  $Q_{\text{lig}}$ . Essas partículas de menor tamanho são mais suscetíveis ao arraste ocasionando maior perda de material e, conseqüentemente, menor rendimento do processo. Quanto mais rápida a inserção de líquido no leito mais rápido é o umedecimento da superfície das partículas e mais rápida será a nucleação e a formação de partículas intermediárias ( $150 \mu\text{m} < d_p < 300 \mu\text{m}$ ). Além disso, para os ensaios de maior  $Q_{\text{lig}}$ , como a quantidade de ligante foi mantida constante, o tempo total de processo é menor, sendo as partículas submetidas ao arraste por menos tempo. O aumento da  $Q_{\text{lig}}$  também favoreceu o

crescimento de outros pós orgânicos como pectina (Hirata et al., 2013), proteína de soja (Dacanal e Menegalli, 2010) e proteína de arroz (Andreola, 2017).

As superfícies de resposta que envolvem a  $Q_{lig}$  são apresentadas na Figura 4.35. Nelas é possível observar que à medida que a  $Q_{lig}$  aumenta, tende-se a obter maior rendimento para o processo. Maiores rendimentos são esperados quando se associa alta  $Q_{lig}$  e  $C_{lig}$  entre os níveis 0,0 e +1, ou seja, 12,8 e 20,0% (m/m) ou  $Q_{lig}$  em níveis acima do ponto central e baixos valores de  $T_{ar}$ .

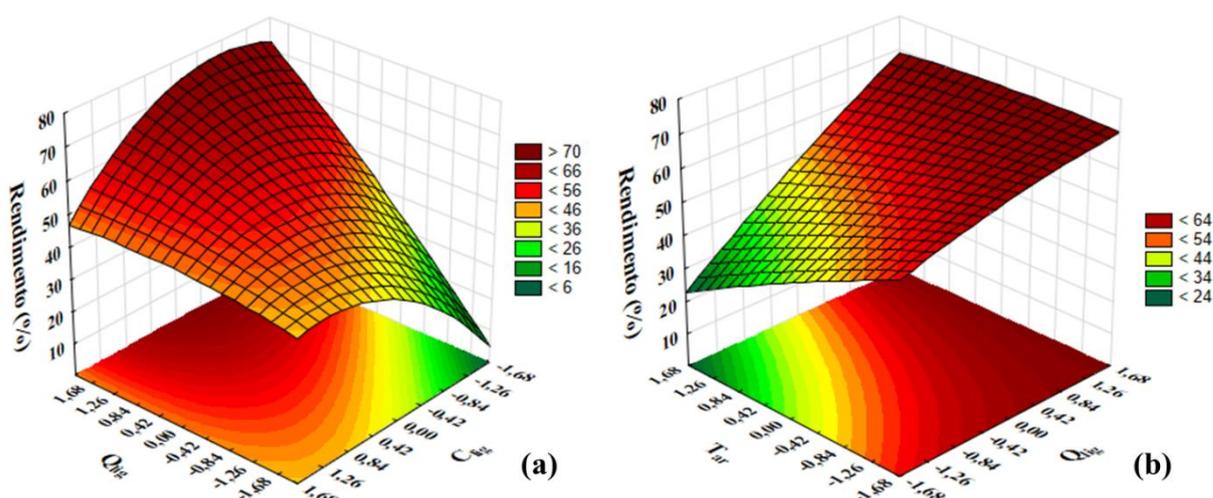


Figura 4.35: Superfícies de resposta para o rendimento do processo em função de (a)  $C_{lig}$  e  $Q_{lig}$ , (b) e  $Q_{lig}$  e  $T_{ar}$ .

#### 4.7.2.2 Efeito da temperatura do ar de fluidização

O aumento da temperatura do ar de fluidização provocou redução no rendimento do processo. Em condições de maior  $T_{ar}$ , a evaporação do ligante é mais rápida ocorrendo assim menor umedecimento das partículas. Esse comportamento pode ser visto pela evolução da umidade do material (Figura 4.30) em que a umidade do material foi menor ao longo do processo para aqueles ensaios realizados sob maior  $T_{ar}$ . Em um leito de partículas menos úmidas, o número de choques efetivos para formação de núcleos e posterior coalescência entre esses núcleos será menor, assim o crescimento dos grânulos será mais lento. Estas partículas menores são mais facilmente arrastadas durante o processo reduzindo o seu rendimento.

De acordo com o diagrama de Pareto, Figura 4.32, a  $T_{ar}$  apresentou efeito significativo e linear negativo no  $\eta$ , ou seja, o  $\eta$  é reduzido quando ocorre aumento da  $T_{ar}$ . A

$T_{ar}$  também teve efeito significativo e negativo para a aglomeração de pectina com soluções de goma arábica (Hirata et al., 2013).

É interessante salientar que o rendimento mais baixo, 16,4%, foi observado nas condições de  $Q_{lig}$  no nível -1 (1,5 mL/min) e a  $T_{ar}$  no nível +1 (85 °C), ensaio 3. Nesse ensaio, a lenta inserção de ligante associada à alta temperatura ocasionaram expressivo arrastes de material reduzindo significativamente o rendimento do processo. O produto aglomerado nesse ensaio não foi o que apresentou menor  $D_{50v}$ , mas foi, entre todos, o que apresentou menor umidade. Isso indica que, além do tamanho da partícula, a baixa umidade do material também pode favorecer o seu arraste.

As superfícies de resposta que envolvem a  $T_{ar}$  são apresentadas na Figura 4.35 (b) e na Figura 4.36. Nota-se que altas  $T_{ar}$ , acima do ponto central, ocasionam diminuição no valor do  $\eta$  quando são utilizadas baixas  $Q_{lig}$ . Entretanto, a partir do ponto central para a  $Q_{lig}$ , o aumento na  $T_{ar}$  não é muito prejudicial ao  $\eta$ . Isto é, nas condições estudadas, o aumento na taxa de secagem ocasionado pelo aumento da temperatura é contrabalanceado pelo aumento da  $Q_{lig}$  e, para altos valores de  $Q_{lig}$ , não é prejudicial ao rendimento do processo. Na interação entre  $T_{ar}$  e  $C_{lig}$ , o aumento da primeira variável terá maior efeito no  $\eta$  para níveis de  $C_{lig}$  abaixo de -1.

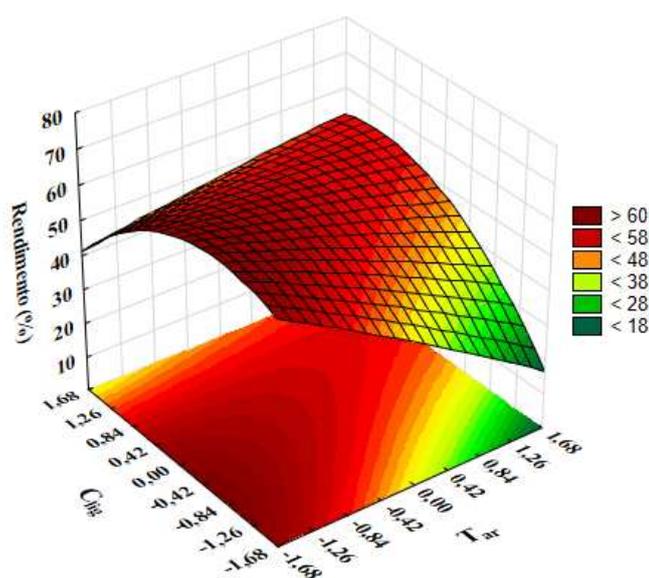


Figura 4.36: Superfícies de resposta para o rendimento do processo em função de  $C_{lig}$  e  $T_{ar}$ .

#### 4.7.2.3 Efeito da concentração da solução ligante

Dentre as variáveis independentes, a concentração da solução ligante apresentou menor efeito sobre o rendimento do processo. É possível perceber que, de maneira geral, aqueles ensaios com variação apenas na  $C_{lig}$  apresentaram valores próximos para o  $\eta$ . Para os ensaios 1 (1,5 mL/min, 65 °C e 5,6% (m/m)) e 2 (1,5 mL/min, 65 °C e 20,0% (m/m)), os rendimentos foram 52,0 e 53,6%, respectivamente. Para os ensaios 7 (3,0 mL/min, 85 °C e 5,6% (m/m)) e 8 (3,0 mL/min, 85 °C e 20,0% (m/m)) os rendimentos foram 54,2 e 57,2%, respectivamente, sendo os ensaios realizados com maior  $C_{lig}$ , nestes dois exemplos, aqueles que apresentaram rendimentos ligeiramente maiores. Os pontos axiais que são os níveis extremos com relação  $C_{lig}$  (0,7% e 24,9% (m/m)) apresentaram também valores de  $\eta$  muito próximos, 45,7 e 44,8%, respectivamente. Os casos em que houve maior variação do  $\eta$  com a variação da  $C_{lig}$  apresentaram comportamentos distintos. Na comparação entre os ensaios 3 e 4, o ensaio 3, com concentração mais baixa, apresentou rendimento muito mais baixo e na comparação entre os ensaios 5 e 6, o ensaio 5, de menor concentração apresentou rendimento ligeiramente mais alto.

As superfícies de resposta que envolvem a variável independente  $C_{lig}$  são apresentadas na Figura 4.35 (a) e na Figura 4.36. Observa-se que o efeito da  $C_{lig}$  é mais pronunciado quando utilizadas pequenas  $Q_{lig}$  e menores  $T_{ar}$ . Resultado semelhante, para a interação entre  $C_{lig}$  e  $Q_{lig}$ , foi obtido por Hirata (2015) para o rendimento do processo de aglomeração de pectina utilizando soluções de goma arábica.

Dessa forma, apesar dos efeitos estatísticos (Figura 4.32) apontarem para significância do efeito da  $C_{lig}$ , os resultados experimentais não apresentaram essa tendência. Isso pode estar relacionado ao fato de que, segundo o modelo, maior variação no rendimento com a variação na  $C_{lig}$  é esperada quando extremo inferior da  $Q_{lig}$  é utilizada (Figura 4.35 (a)) ou quando extremo superior da  $T_{ar}$  é utilizada (Figura 4.36). Porém, ensaios com essas condições experimentais não foram realizados.

Experimentalmente foi observada uma semelhança entre as cinéticas de crescimento do grânulo, nos momentos iniciais, e entre as umidades do material, ao longo de todo processo, para todos os ensaios que envolveram variação na  $C_{lig}$ , conforme mostrado no item 4.7.1.1. As taxas de crescimento muito próximas indicam que uma redução similar na quantidade de partículas muito finas, ou seja, partículas mais sujeitas ao arraste. A Figura 4.37

apresenta as distribuições de tamanho de partículas para os ensaios 13 (2,3 mL/nin, 75 °C e 0,7% (m/m)) e 14 (2,3 mL/nin, 75 °C e 24,9% (m/m)) após 15 minutos de aspersão de solução ligante e reforça esta hipótese. Os dois ensaios apresentam distribuição do tamanho das partículas semelhantes, o que indica similaridade também na quantidade de partículas arrastadas e, conseqüentemente, resultou em valores de  $\eta$  semelhantes.

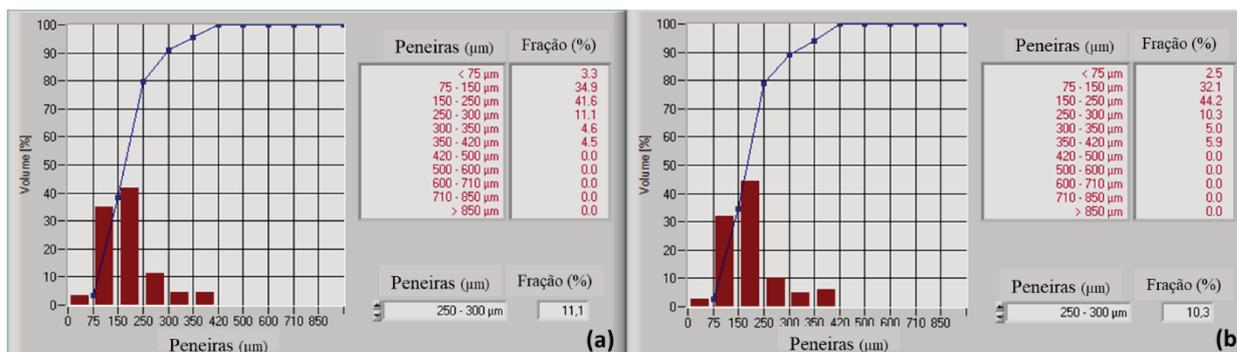


Figura 4.37: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas pela sonda Parsum após 15 minutos de processo para os ensaios (a) 13 e (b) 14.

#### 4.7.3 Otimização da aglomeração utilizando solução de goma arábica como ligante

As condições ótimas do processo foram obtidas a partir dos modelos propostos para rendimento e tamanho final da partícula utilizando o programa *Solver toolbox* (Microsoft Excel v.2016). Os níveis dos parâmetros do processo foram determinados de modo que o tamanho da partícula fosse máximo. Os valores obtidos foram 0,91 (3,0 mL/min), 0,00 (75 °C) e 0,96 (19,7% (m/m)) para  $T_{ar}$ ,  $Q_{lig}$  e  $C_{lig}$ , respectivamente.

Um ensaio foi realizado nas condições determinadas como ótimas para validação. Os valores preditos foram 349,2  $\mu\text{m}$  para o tamanho médio da partícula e 60,0% de rendimento. Os valores obtidos no ensaio de validação foram  $336,6 \pm 9,1 \mu\text{m}$  e 68,0%. Os modelos podem ser considerados válidos, uma vez que os desvios dos valores obtidos experimentalmente foram baixos em relação àqueles preditos, 3,6% para o  $D_{50v}$  e 13,3% para o rendimento. A umidade final do material aglomerado nessas condições foi igual a  $7,6 \pm 0,24\%$  (b.u.), abaixo do limite estabelecido de 10,0% (b.u.). A fração de torrões produzidos foi baixa, comparada aos valores obtidos para os ensaios do planejamento experimental, igual a 4,1%.

#### 4.7.4 Caracterização do produto aglomerado

##### 4.7.4.1 Distribuição de tamanho das partículas

A Figura 4.38 apresenta a distribuição de tamanho de partículas para a matéria-prima e para o produto aglomerado nas condições ótimas. O processo de aglomeração alterou a distribuição de tamanho das partículas reduzindo consideravelmente a fração de partículas menores que 150  $\mu\text{m}$ . Após o processo de aglomeração, a distribuição de tamanho de partícula é mais ampla com partículas maiores que 600  $\mu\text{m}$  e pequena fração de partículas finas ( $d_p < 150 \mu\text{m}$ ). Assim como para as diferentes condições testadas, na condição ótima, a maior fração de partículas apresentou tamanho entre 150 e 250  $\mu\text{m}$ .

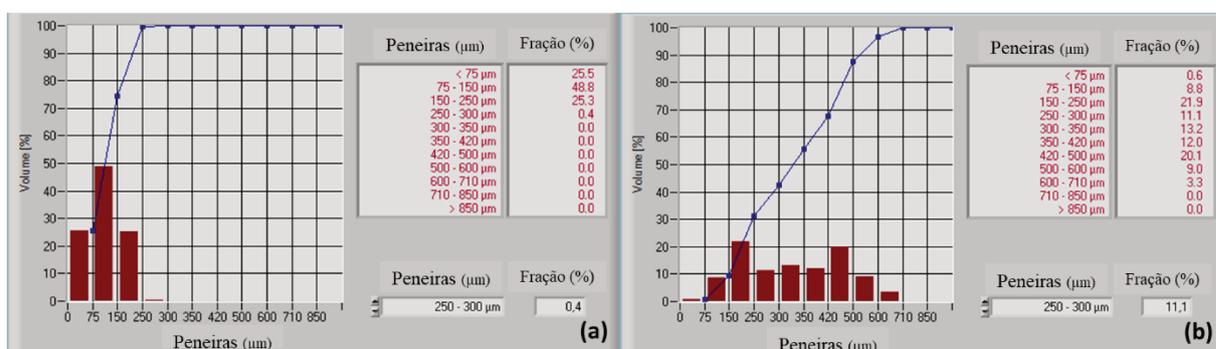


Figura 4.38: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica (a) e para a goma arábica aglomerada com soluções da própria goma nas condições do ponto ótimo (b).

Uma análise da distribuição de tamanho das partículas foi feita para todos os ensaios realizados e foi observado que quanto maior o  $D_{50v}$  final apresentado, maior a amplitude da distribuição de tamanho. A Figura 4.39 apresenta a distribuição de tamanho para os produtos aglomerados que apresentaram o menor  $D_{50v}$  (ensaio 13), o  $D_{50v}$  intermediário (ensaio 14) e o maior  $D_{50v}$  (ensaio 6). O ensaio 13, que apresentou menor  $D_{50v}$ , apresentou distribuição de tamanho de partícula mais estreita e maior fração de partículas menores que 150  $\mu\text{m}$ . As maiores partículas produzidas nessas condições tiveram  $420 \mu\text{m} < d_p < 500 \mu\text{m}$ . O ensaio 14 apresentou maior redução nas partículas menores que 150  $\mu\text{m}$ , quando comparado ao ensaio 13, além de apresentar partículas maiores que 600  $\mu\text{m}$ . Por último, o ensaio 6, que apresentou maior valor de  $D_{50v}$ , praticamente não apresentou partículas menores que 75  $\mu\text{m}$  (apenas 0,2%) e apresentou partículas maiores que 710  $\mu\text{m}$ , sendo a distribuição de tamanho mais ampla de todos os ensaios

realizados. Esses resultados são coerentes, uma vez que o material com maior fração de partículas maiores apresentará maior tamanho médio de partícula.

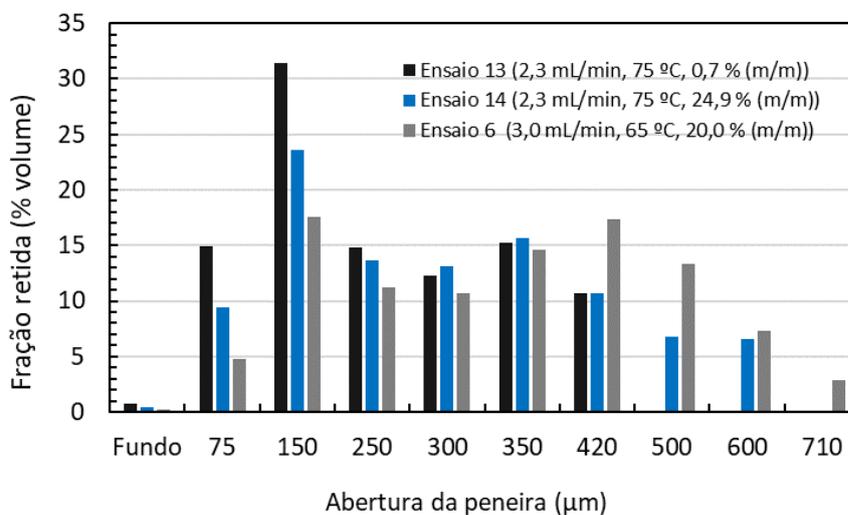


Figura 4.39: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica aglomerada com soluções da própria goma nos ensaios 6, 13 e 14.

#### 4.7.4.2 Tempo de instantaneização e capacidade de dispersão

A Figura 4.40 apresenta imagens do teste de instantaneização realizado para a matéria-prima e para a goma arábica aglomerada com solução da própria goma nas condições ótimas. O tempo para completa submersão do material foi muito próximo para todas as condições experimentais usadas. O menor tempo, apresentado pelo ensaio nas condições ótimas de processo, foi igual a 1,6 segundos e o maior tempo, apresentado pelo ensaio 12, foi igual a 3,3 segundos. Ou seja, em termos práticos os tempos de instantaneização podem ser considerados iguais. Dessa forma, as alterações no tamanho médio e na estrutura das partículas oriundas do processo de aglomeração facilitaram a penetração do líquido possibilitando o seu rápido umedecimento.

Em outros estudos com diferentes materiais orgânicos também foi observado que o tempo de umedecimento do material aglomerado foi reduzido quando comparado com a matéria-prima não aglomerada como, por exemplo, para pectina (Hirata et al., 2013), para farinha de banana verde (Rayo et al., 2015) e para proteína de arroz (Andreola, 2017).

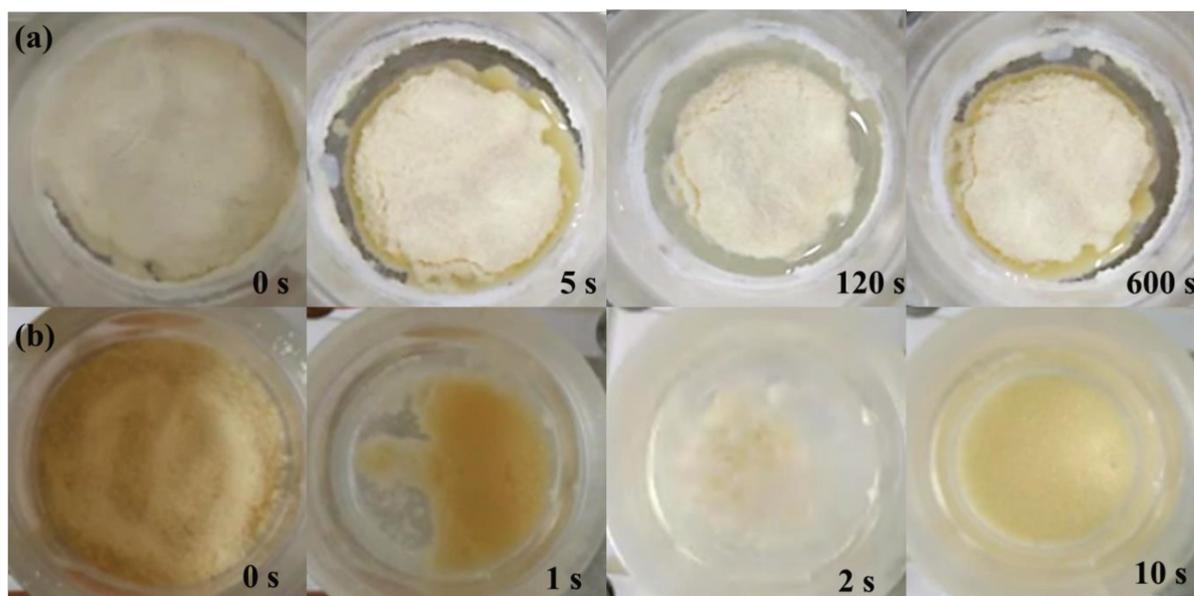


Figura 4.40: Teste de instantaneização para (a) goma arábica não aglomerada, (b) goma arábica aglomerada nas condições ótimas.

A capacidade de dispersão foi avaliada visualmente tanto para a matéria-prima como para o produto aglomerado nas condições ótimas conforme descrito no item 3.3.5. Imagens do béquer com água e amostra, após os 5 minutos de agitação, são mostradas na Figura 4.41.

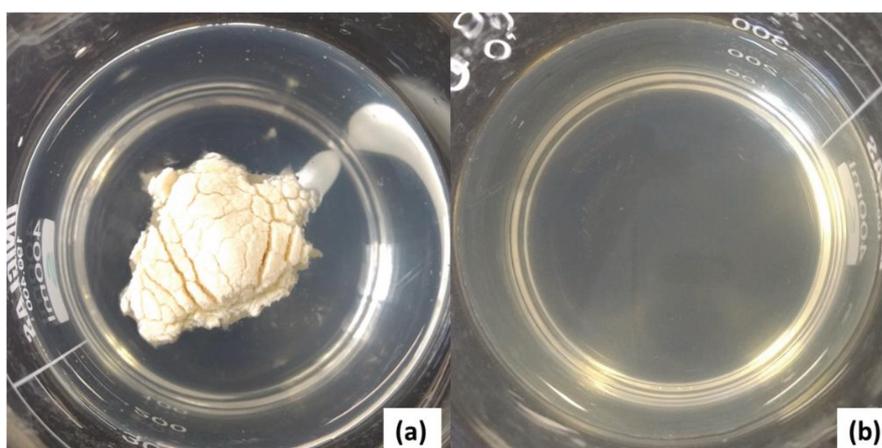


Figura 4.41: Dispersão em água (a) matéria-prima e (b) goma arábica aglomerada com soluções da própria goma nas condições ótimas.

É possível observar que a matéria-prima, mesmo sob agitação não se dispersou bem em água e ocorreu a formação de um grande grumo. A goma arábica aglomerada dispersou-se completamente e não ocorreu a formação de grumos e sim de uma solução límpida com a

amostra completamente dissolvida. Isso mostra que o mais rápido umedecimento e submersão do produto aglomerado observados no teste de instantaneização refletiu em melhor capacidade de dispersão sob agitação. Melhor dispersão do produto aglomerado em relação a matéria-prima também foi relatada para pectina de alto grau de metoxilação (Hirata, 2015).

Segundo Schubert (1987), partículas mais finas tem maior tendência à formação de grumos e à medida que o tamanho das partículas aumenta, as suas propriedades de fluidez, umedecimento e dispersão são aprimoradas. O processo de aglomeração, por aumentar o tamanho das partículas, melhorou as propriedades de umedecimento e de dispersão da goma arábica em pó de forma a facilitar o seu manuseio e condições de uso.

#### 4.7.4.3 Propriedades de fluidez

De maneira geral, a goma arábica aglomerada apresentou melhor propriedade de fluidez do que a matéria-prima, uma vez que houve redução no valor do  $I_{Carr}$  para todas as condições utilizadas. Entretanto, alteração na classificação do nível de fluidez ocorreu para algumas condições como mostrado na Tabela 4.11. Foi verificada uma relação entre o nível de fluidez e a umidade do material, uma vez que os aglomerados obtidos nos ensaios que combinaram baixa  $Q_{lig}$  e alta  $T_{ar}$  apresentaram menor  $X_{b,u}$  final e melhor nível de fluidez. Este foi o caso do ensaio 3, por exemplo, que apresentou a  $X_{b,u}$  mais baixa e o melhor nível de fluidez, indicando que a redução na umidade do material favorece essa propriedade.

Não foi possível estabelecer uma relação entre o nível de fluidez e o  $D_{50v}$  da partícula o que pode ser ilustrado pelos valores de  $I_{Carr}$  muito próximos apresentados pelos produtos dos ensaios 11 e 13, maior e menor  $D_{50v}$  final, respectivamente.

Tabela 4.11:  $I_{Carr}$  e nível de fluidez para a matéria-prima e para os produtos obtidos nas condições do planejamento experimental para aglomeração de goma arábica com soluções da própria goma.

Ensaio	$Q_{lig}$ (mL/min)	$T_{ar}$ (°C)	$C_{lig}$ %	$\rho_b$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\rho_t$ (g/cm <sup>3</sup> )	$I_{Carr}$ (%)	Nível de fluidez
MP	-	-	-	$0,43 \pm 0,01$	$0,59 \pm 0,02$	$27,7 \pm 1,3$	Moderado
1	1,5	65	5,6	$0,33 \pm 0,01$	$0,44 \pm 0,01$	$23,5 \pm 2,3$	Moderado
2	1,5	65	20,0	$0,33 \pm 0,09$	$0,43 \pm 0,11$	$22,2 \pm 2,7$	Moderado
3	1,5	85	5,6	$0,48 \pm 0,00^1$	$0,56 \pm 0,01$	$14,3 \pm 0,8$	Escoa livremente
4	1,5	85	20,0	$0,45 \pm 0,02$	$0,56 \pm 0,02$	$19,8 \pm 0,0^5$	Bom escoamento
5	3,0	65	5,6	$0,30 \pm 0,00^2$	$0,40 \pm 0,01$	$25,2 \pm 1,8$	Moderado
6	3,0	65	20,0	$0,28 \pm 0,02$	$0,37 \pm 0,01$	$24,6 \pm 2,4$	Moderado
7	3,0	85	5,6	$0,31 \pm 0,01$	$0,40 \pm 0,02$	$23,8 \pm 1,9$	Moderado
8	3,0	85	20,0	$0,33 \pm 0,02$	$0,43 \pm 0,02$	$24,2 \pm 2,6$	Moderado
9	1,0	75	12,8	$0,46 \pm 0,00^3$	$0,56 \pm 0,01$	$19,2 \pm 2,1$	Bom escoamento
10	3,6	75	12,8	$0,24 \pm 0,01$	$0,32 \pm 0,02$	$26,5 \pm 0,7$	Moderado
11	2,3	58	12,8	$0,29 \pm 0,01$	$0,37 \pm 0,02$	$22,8 \pm 1,9$	Moderado
12	2,3	92	12,8	$0,36 \pm 0,01$	$0,45 \pm 0,03$	$20,3 \pm 2,1$	Moderado
13	2,3	75	0,7	$0,37 \pm 0,01$	$0,48 \pm 0,01$	$23,1 \pm 0,6$	Moderado
14	2,3	75	24,9	$0,39 \pm 0,01$	$0,49 \pm 0,01$	$19,6 \pm 1,0$	Bom escoamento
15	2,3	75	12,8	$0,37 \pm 0,01$	$0,45 \pm 0,01$	$18,3 \pm 1,7$	Bom escoamento
16	2,3	75	12,8	$0,39 \pm 0,00^4$	$0,47 \pm 0,01$	$17,8 \pm 0,6$	Bom escoamento
17	2,3	75	12,8	$0,37 \pm 0,01$	$0,46 \pm 0,02$	$18,7 \pm 2,4$	Bom escoamento
Ponto ótimo	3,0	75	19,7	$0,33 \pm 0,01$	$0,40 \pm 0,01$	$17,2 \pm 2,7$	Bom escoamento

\*<sup>1</sup>0,003; <sup>2</sup>0,002; <sup>3</sup>0,005; <sup>4</sup>0,003; <sup>5</sup>0,003.

#### 4.7.4.4 Microscopia eletrônica de varredura

As micrografias eletrônicas de varredura obtidas para aumentos de 100x, 500x, 1000x e 5000x para a matéria-prima e para o produto aglomerado são apresentadas na Figura 4.42. É possível observar que houve alteração das partículas em decorrência do processo de aglomeração. As partículas oriundas deste processo são menos arredondadas e mais irregulares do que a goma arábica não aglomerada. Nas micrografias da goma arábica não aglomerada são visualizadas partículas isoladas muito pequenas e arredondadas que estão ausentes nas

micrografias do produto aglomerado. Neste produto estas partículas menores aparecem aderidas as superfícies de partículas maiores confirmando o fenômeno de aglomeração.

Nas Figura 4.42 (F) e (G) é possível visualizar pontos que, aparentemente, são pontos em que houve a formação das pontes sólidas responsáveis pela união entre as partículas. Estas pontes não apresentam rachaduras o que indica que são pontes resistentes. A Figura 4.42 (H) apresenta a ampliação desses pontos. Essa aparente fusão entre partículas e solução ligante também foi observada por (Hirata, 2015) quando soluções de goma arábica foram utilizadas como ligantes na aglomeração de pectina.

As estruturas aglomeradas apresentaram-se também mais porosas, uma vez que ficam espaços vazios entre as partículas menores que lhes deram origem. Esta característica favorece a penetração do líquido no seu interior e, no caso estudado, refletiu-se na significativa redução do tempo de umedecimento e submersão do material em água.

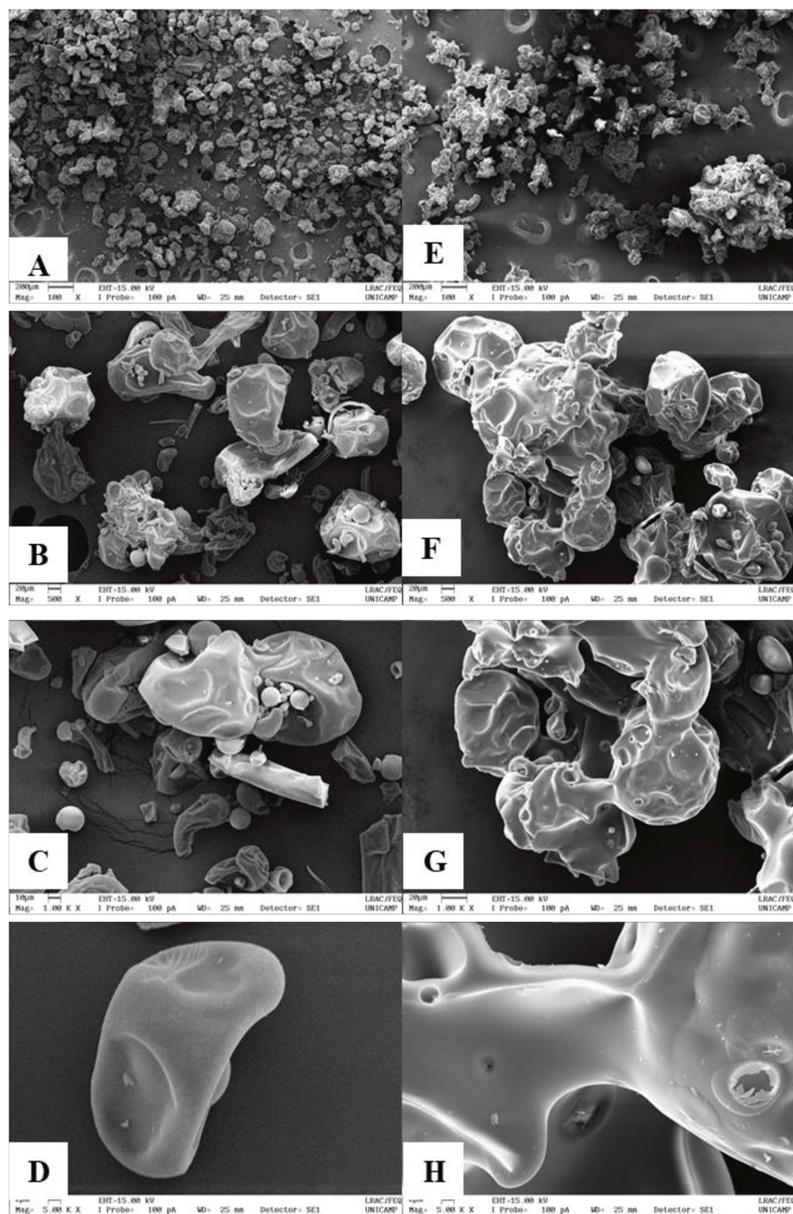


Figura 4.42: Micrografias da matéria-prima (A, B, C e D) e para a goma arábica aglomerada nas condições ótimas (E,F, G e H).

#### 4.7.4.5 Estabilidade da emulsão

A estabilidade da emulsão formada pela goma arábica aglomerada nas condições ótimas foi comparada com a apresentada pela matéria-prima conforme descrito no item 3.3.6. Após 7 dias do preparo das emulsões, tanto a emulsão preparada com a matéria-prima como aquela preparada com o aglomerado apresentaram três camadas diferentes: soro, emulsão e creme (Figura 4.43). As camadas formadas foram semelhantes às descritas por McClements

(2007), a camada de soro foi opticamente transparente, a camada de emulsão apresentou aparência semelhante à da emulsão original e a camada de creme formado foi opticamente opaca.

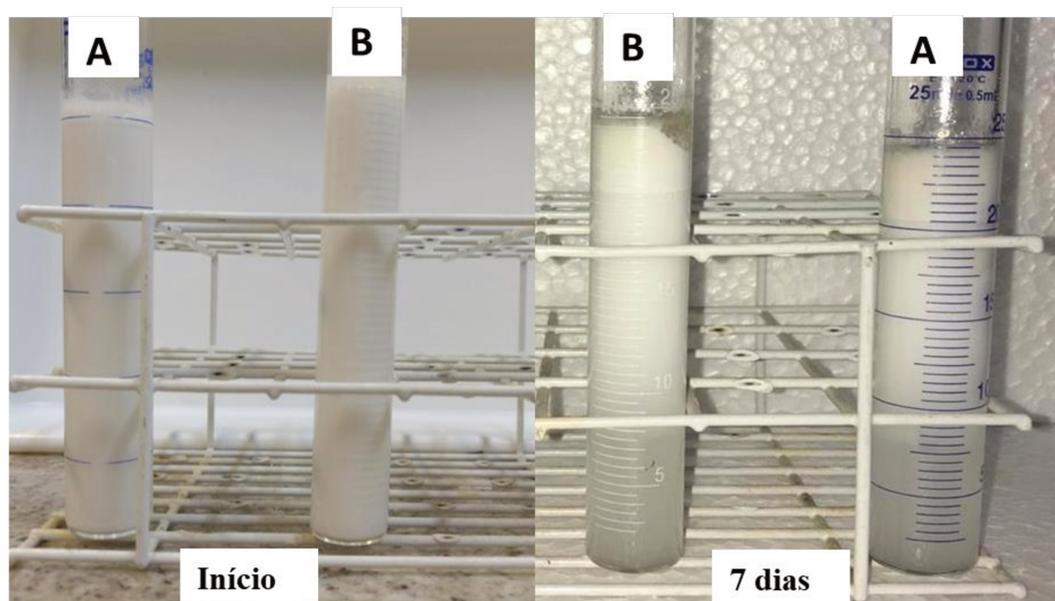


Figura 4.43: Emulsões preparadas com goma arábica não aglomerada (A) e aglomerada com solução da própria goma nas condições ótima (B).

O índice de formação de creme, calculado de acordo com a Equação 3.1, para o produto aglomerado foi igual a 57,7% enquanto que para a matéria-prima ele foi igual a 64,0%. Isso indica que a emulsão formada com o produto aglomerado foi ligeiramente mais estável que aquela formada com a matéria-prima, apresentando menor desprendimento de óleo. Esse resultado mostra que o processo de aglomeração não prejudicou a capacidade de estabilização de emulsão da goma arábica e, pelo contrário, proporcionou uma melhora nesta importante propriedade do material.

#### 4.8 AGLOMERAÇÃO COM SOLUÇÕES DE INULINA

A análise da aglomeração de goma arábica utilizando soluções de inulina como agente ligante foi feita com base em um planejamento experimental do tipo composto central rotacional (DCCR). As variáveis  $H_b$ ,  $P_{atz}$  e massa de matéria-prima foram mantidas fixas em valores iguais aos utilizados na aglomeração com soluções da própria goma. O volume de

ligante adicionado foi igual ao utilizado no processo de aglomeração utilizando soluções da própria goma como ligante, ou seja, 100 mL.

As condições utilizadas para as variáveis independentes,  $Q_{\text{lig}}$  e  $T_{\text{ar}}$ , também foram iguais às utilizadas na aglomeração com soluções de goma arábica e determinadas com base em ensaios preliminares. A condição máxima para a variável independente  $C_{\text{lig}}$  foi determinada de acordo com testes de solubilização realizados preparando-se soluções de 20,0 a 25,0% (m/m). Como a partir da concentração de 23,0% (m/m) não houve completa solubilização à temperatura ambiente, foi estabelecida a  $C_{\text{lig}}$  máxima utilizada neste estudo, 22,1% (m/m). A solubilidade da inulina descrita na literatura é ampla e variou desde 1,2% (peso/volume) a 40,0% (peso/volume) e diversos autores relatam a sua dependência com a temperatura (Silva, 1996; Kim et al., 2001 e Bot et al., 2004).

As condições para cada ensaio e os resultados obtidos para as respostas analisadas, o tamanho médio final das partículas ( $D_{50v}$ ) e rendimento do processo ( $\eta$ ), são apresentados na Tabela 4.12. O valor atribuído ao  $D_{50v}$  é a média de dez medidas feitas a partir da parada de atomização de ligante e variou entre  $244,4 \pm 4,5 \mu\text{m}$  e  $303,5 \pm 6,9 \mu\text{m}$ . Assim como na aglomeração utilizando soluções da própria goma, a umidade do material ao final da aspersão foi menor do que 10,0% para todos os ensaios, não sendo necessário um período de secagem.

O  $D_{50v}$  aumentou para todas as condições experimentais analisadas. O menor  $D_{50v}$  final,  $244,4 \pm 4,5 (\mu\text{m})$ , foi obtido para o ensaio 12 que foi realizado sob maior  $T_{\text{ar}}$ , 92 °C. O maior valor de  $D_{50v}$ ,  $303,5 \pm 6,9 (\mu\text{m})$ , foi obtido para o ensaio 10 que foi realizado sob maior  $Q_{\text{lig}}$ . Esses valores confirmam que houve aglomeração durante o processo e indicam que soluções de inulina podem ser utilizadas como ligante. Não foram encontrados na literatura estudos que analisaram o comportamento das soluções de inulina como ligante.

O  $\eta$  apresentado na Tabela 4.12 variou entre 38,3% e 70,4% e a maioria dos ensaios apresentou rendimento acima de 50,0%. Assim como na aglomeração com soluções de goma arábica, o arraste de material, principalmente no início do processo, em decorrência do tamanho das partículas, foi a principal causa de perda de material. Nesse caso, no entanto, houve maior formação de torrões e aquelas condições com baixos rendimentos também apresentaram maior fração de torrões. Esse foi o caso dos ensaios 4 e 9, que apresentaram menores rendimentos e maiores frações de torrões dentre todas as condições testadas.

Tabela 4.12: Planejamento DCCR 2<sup>3</sup>, D<sub>50v</sub>, X<sub>b.u.</sub> e  $\eta$  e para aglomeração utilizando soluções de inulina.

Ensaio	Q <sub>lig</sub> (mL/min)	T <sub>ar</sub> (°C)	C <sub>lig</sub> (%)	D <sub>50v</sub> (µm)	X <sub>b.u.</sub> (%)	$\eta$ (%)
1	1,5 (-1)	65 (-1)	6,0 (-1)	285,1 ± 10,9	5,8 ± 0,1	47,4
2	1,5 (-1)	65 (-1)	18,0 (+1)	268,4 ± 6,6	6,0 ± 0,3	47,3
3	1,5 (-1)	85 (+1)	6,0 (-1)	249,5 ± 6,3	3,3 ± 0,1	40,5
4	1,5 (-1)	85 (+1)	18,0 (+1)	270,1 ± 2,2	3,5 ± 0,0	39,7
5	3,0 (+1)	65 (-1)	6,0 (-1)	291,4 ± 1,5	7,9 ± 0,1	53,0
6	3,0 (+1)	65 (-1)	18,0 (+1)	282,7 ± 6,8	7,4 ± 0,1	64,8
7	3,0 (+1)	85 (+1)	6,0 (-1)	260,9 ± 2,8	6,1 ± 0,1	59,7
8	3,0 (+1)	85 (+1)	18,0 (+1)	278,9 ± 5,0	5,7 ± 0,2	60,3
9	1,0 (-1,68)	75 (0)	12,0 (0)	277,1 ± 2,0	3,5 ± 0,3	38,3
10	3,6 (+1,68)	75 (0)	12,0 (0)	303,5 ± 6,9	8,6 ± 0,1	70,4
11	2,3 (0)	58 (-1,68)	12,0 (0)	295,6 ± 6,7	7,9 ± 0,2	58,1
12	2,3 (0)	92 (+1,68)	12,0 (0)	244,4 ± 4,5	4,5 ± 0,1	49,3
13	2,3 (0)	75 (0)	1,9 (-1,68)	270,8 ± 4,5	6,0 ± 0,1	52,5
14	2,3 (0)	75 (0)	22,1 (+1,68)	281,2 ± 1,8	6,6 ± 0,0	59,0
15	2,3 (0)	75 (0)	12,0 (0)	281,4 ± 4,1	5,8 ± 0,1	57,4
16	2,3 (0)	75 (0)	12,0 (0)	280,0 ± 3,2	5,8 ± 0,2	57,6
17	2,3 (0)	75 (0)	12,0 (0)	268,0 ± 3,9	6,6 ± 0,1	52,7

A cinética de crescimento e a evolução da umidade para os três ensaios nas condições do ponto central são mostradas na Figura 4.44. É observado um perfil similar para os três ensaios de modo que eles podem ser considerados reproduzíveis.

Os dados experimentais obtidos para as respostas D<sub>50v</sub> e  $\eta$  foram tratados estatisticamente para obtenção de modelos polinomiais que descrevessem o comportamento dessas respostas em função das variáveis independentes, Q<sub>lig</sub>, T<sub>ar</sub>, C<sub>lig</sub>. A significância estatística desses modelos e a qualidade do ajuste foram determinadas por ANOVA a um nível de confiança de 90,0% e pela realização o teste F de Fischer. O ajuste dos dados experimentais ao modelo foi avaliado por meio dos coeficientes de determinação (R<sup>2</sup>).

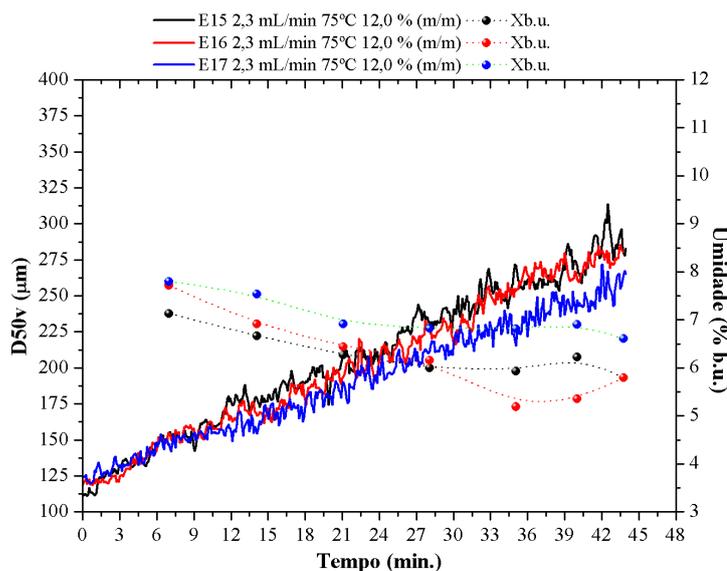


Figura 4.44: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade do material para o ponto central (2,3 mL/min, 75 °C, 12,0% (m/m), durante aglomeração de goma arábica com soluções de inulina.

A análise dos resultados obtidos e dos modelos propostos serão apresentadas para cada resposta separadamente. Ao final, será apresentado um modelo proposto para otimização do processo levando-se em conta as duas respostas analisadas.

#### 4.8.1 Tamanho final da partícula e cinética de crescimento do grânulo

Os valores de  $D_{50v}$  mostrados na Tabela 4.12 indicam que as variáveis independentes exerceram influência sobre o tamanho final da partícula. É possível perceber que, de maneira geral, o aumento da  $T_{ar}$  prejudicou o aumento das partículas, pois os menores tamanhos foram obtidos para temperaturas mais altas, ensaio 12 ( $T_{ar}$  igual 92 °C) e ensaio 3 ( $T_{ar}$  igual a 85 °C). Além disso, o aumento da  $Q_{lig}$  favoreceu o aumento da partícula sendo o maior  $D_{50v}$  obtido para o ensaio de maior  $Q_{lig}$ , ensaio 10. Não é possível traçar uma tendência de variação no valor de  $D_{50v}$  de acordo com a variação na  $C_{lig}$ .

Uma análise estatística da significância dos efeitos das variáveis independentes na resposta  $D_{50v}$  pode ser feita por meio do diagrama de Pareto apresentado na Figura 4.45. Ele exibe os efeitos para as três variáveis independentes bem como para as interações entre elas a um intervalo de confiança de 90,0%. Os efeitos estatisticamente significativos localizam-se à direita do limiar de significância ( $p < 0,1$ ).

Os resultados apresentados na Figura 4.45 confirmam a observação com base nos dados da Tabela 4.12 sobre a influência das variáveis independentes no  $D_{50v}$ . Eles indicam que dentre as variáveis independentes, a  $T_{ar}$  exerceu maior influência sobre o tamanho final das partículas, seguida da  $Q_{lig}$ . A  $C_{lig}$  isoladamente não é significativa para o  $D_{50v}$ , entretanto ela não deve ser desconsiderada uma vez que a sua interação com a  $T_{ar}$  se mostrou significativa. Uma análise dos efeitos de cada uma das variáveis independentes no  $D_{50v}$  foi feita com base nos dados da Tabela 4.12, nas cinéticas de crescimento do grânulo construídas com os dados obtidos por meio da sonda Parsum e na Figura 4.45.

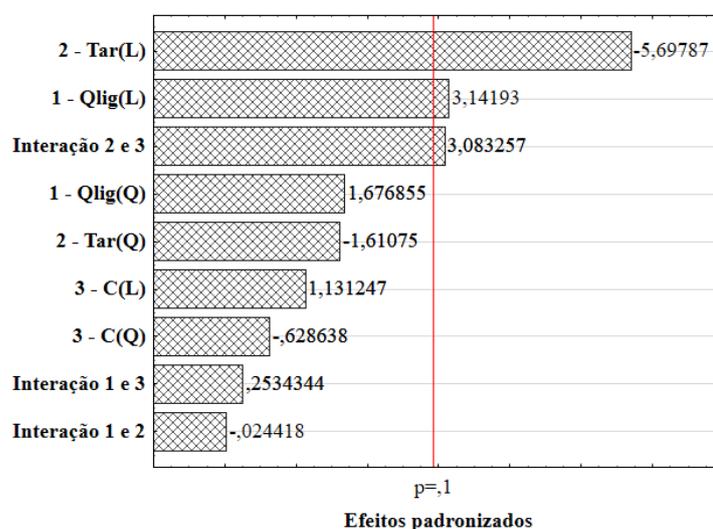


Figura 4.45: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis  $Q_{lig}$  (1),  $T_{ar}$  (2) e  $C_{lig}$  (3) no tamanho médio final das partículas para o processo de aglomeração de goma arábica com soluções da inulina.

Além das cinéticas de crescimento dos grânulos, as superfícies de respostas geradas a partir do modelo polinomial proposto, utilizando-se variáveis codificadas, para o  $D_{50v}$  (Equação 4.5) também foram utilizadas para avaliação da influência das variáveis independentes e estatisticamente significativas no tamanho final das partículas. Isso foi possível pois os resíduos apresentaram distribuição normal, dessa maneira, o modelo foi testado estatisticamente por ANOVA e pelo teste F de Fischer com intervalo de confiança de 90,0%. O modelo foi estatisticamente significativo, uma vez que o  $F_{calc}$  para a regressão, 6,43, foi maior que o  $F_{tab}$ , 2,72. E, pode ser considerado preditivo pois o  $F_{calc}$  para a falta de ajuste, 1,08, foi menor do que o  $F_{tab}$ , 9,29, ou seja, a falta de ajuste não é significativa. O coeficiente de determinação ( $R^2$ ) foi igual 89,0%. É importante salientar que as variáveis independentes no

modelo devem estar em valores codificados e ele é válido para os limites experimentais utilizados neste estudo.

$$D_{50v} = 276,81 + 6,23Q_{lig} + 3,66Q_{lig}^2 - 11,30T_{ar} - 3,52T_{ar}^2 + 2,24C_{lig} - 1,37C_{lig}^2 - 0,06Q_{lig} \cdot T_{ar} + 0,66Q_{lig} \cdot C_{lig} + 7,99T_{ar} \cdot C_{lig} \quad 4.5$$

#### 4.8.1.1 Efeito da temperatura do ar de fluidização

Cinéticas de crescimento dos grânulos para ensaios com diferentes  $T_{ar}$  e mesmas condições de  $Q_{lig}$  e  $C_{lig}$  são apresentadas na Figura 4.46. As cinéticas estão de acordo com o observado a partir dos valores finais de  $D_{50v}$  e coerentes com a Figura 4.45. Os ensaios com menor  $T_{ar}$  proporcionaram maior taxa de crescimento da partícula, ou seja, à medida que a temperatura do ar aumentou menor taxa de crescimento foi observada e, conseqüentemente, menor o tamanho final da partícula foi obtido.

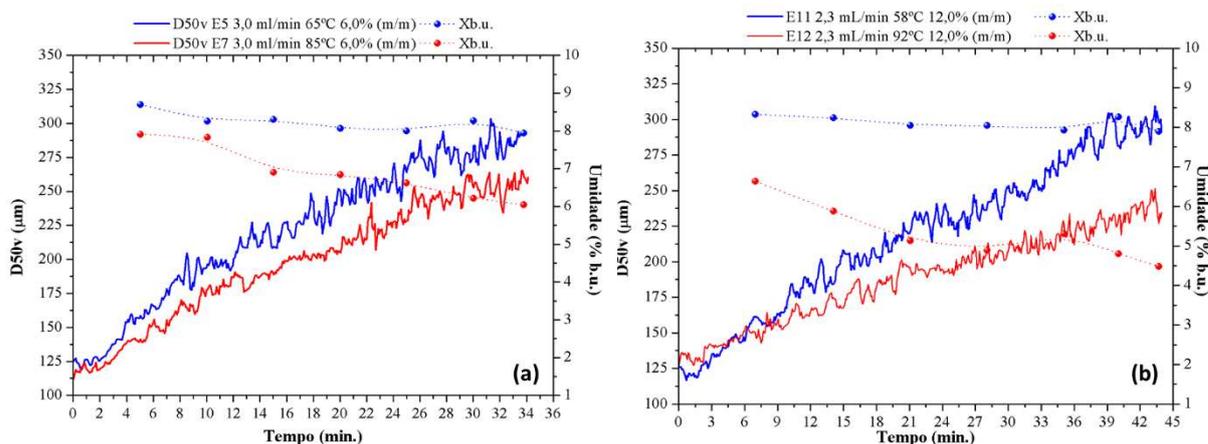


Figura 4.46: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó durante aglomeração com soluções de inulina para os ensaios (a) 5 e 7 e (b) 11 e 12.

O aumento da temperatura do ar aumenta a taxa de secagem da solução ligante, reduz a umidade dentro do leito e causa redução na umidade do material como pode ser observado pela evolução da umidade do material durante os ensaios. Assim, menor quantidade de ligante estará disponível na superfície das partículas tornando-as menos pegajosas o que reduza a quantidade de pontes líquidas formadas e a coalescência entre as partículas.

A Figura 4.47 apresenta a evolução das frações retidas para partículas finas ( $d_p < 150 \mu\text{m}$ ), intermediárias ( $150 < d_p < 300 \mu\text{m}$ ) e partículas grossas ( $d_p > 300 \mu\text{m}$ ) para ensaios com diferentes  $T_{ar}$ . Os dois ensaios apresentaram três fases de crescimento, não apresentando a

fase IV em que ocorre estabilização no tamanho da partícula. No entanto, houve diferença entre eles principalmente no perfil da fase III.

O ensaio 11, com menor temperatura (Figura 4.47 (a)), no início da fase III, apresentou alta taxa de coalescência, com o rápido aumento na fração de partículas grossas. Nos momentos finais ocorreu uma redução na taxa de crescimento da fração de partículas grossas. Ao final desse ensaio, também foi possível notar uma leve redução na fração de partículas intermediárias. Para o ensaio 12, com maior  $T_{ar}$  (Figura 4.47 (b)), a intensidade de coalescência foi menor e a taxa de aumento da fração de partículas grossas foi constante. A coalescência provavelmente ocorreu entre partículas finas e intermediárias, pois houve, durante toda fase III, redução de partículas finas, mas a fração de partículas intermediárias permaneceu constante, isso pode ser em decorrência do aparecimento de partículas intermediárias, por meio da nucleação, e desaparecimento, por meio da coalescência, em uma mesma taxa.

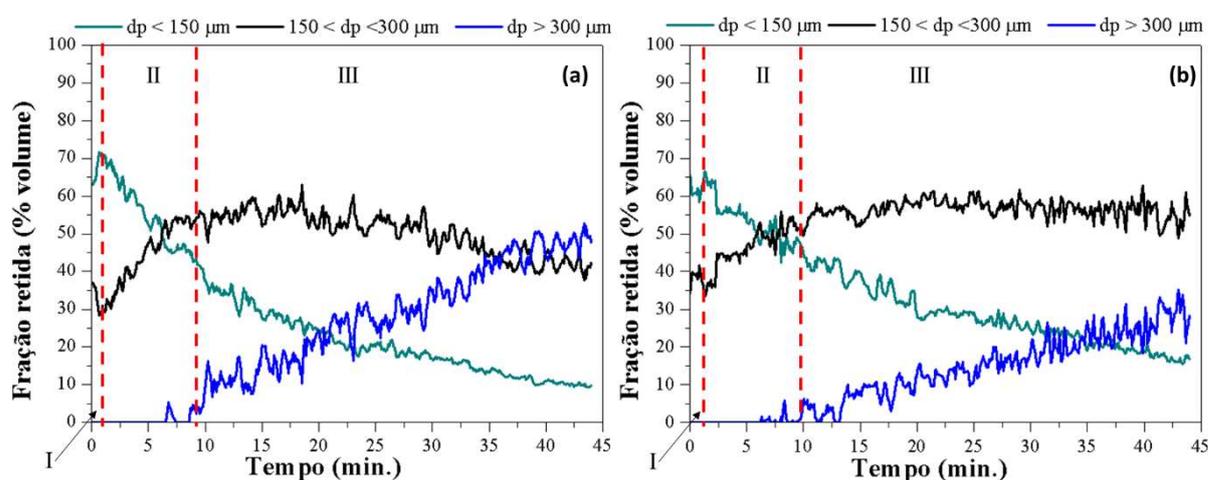


Figura 4.47: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $T_{ar}$  (a) ensaio 11 (2,3 mL/min, 58 °C e 12,0% (m/m)) e (b) ensaio 12 (2,3 mL/min, 92 °C e 12,0% (m/m)).

Superfícies de resposta foram construídas a partir do modelo proposto pela Equação 4.5, uma vez que o modelo se mostrou significativo e os resíduos apresentaram distribuição normal. As superfícies de resposta que envolvem a variável  $T_{ar}$  e demonstram o seu efeito sobre o  $D_{50v}$ , de acordo com o modelo proposto, são apresentadas na Figura 4.48.

Os efeitos da  $T_{ar}$  e da  $Q_{lig}$  são mostrados na Figura 4.48 (a). Nota-se que independente da  $Q_{lig}$  utilizada, à medida que a  $T_{ar}$  aumenta, o  $D_{50v}$  esperado diminui e, para vazões abaixo do ponto central, temperaturas acima do nível 0 diminuem consideravelmente o

valor do  $D_{50v}$ . Todavia, quando o nível da  $Q_{lig}$  está próximo ao nível extremo superior é possível trabalhar com temperaturas até o nível central sem que o tamanho da partícula seja prejudicado. Isso indica que o aumento da vazão de ligante compensa ligeiramente a alta taxa de secagem de ligante proporcionada por altas temperaturas, de modo a permitir o umedecimento e coalescência das partículas viabilizando maior taxa de aglomeração.

A superfície de resposta para o  $D_{50v}$  final em função da  $T_{ar}$  e  $C_{lig}$  é apresentada na Figura 4.48 (b). O efeito do aumento da temperatura na redução do  $D_{50v}$  é mais pronunciado quando esta variável está acima do nível central e a  $C_{lig}$  é utilizada abaixo do nível central. Este comportamento indica que, para a interação entre  $C_{lig}$  e  $T_{ar}$ , o efeito negativo da rápida secagem do ligante será evidente apenas quando associado a maior quantidade de água inserida no leito.

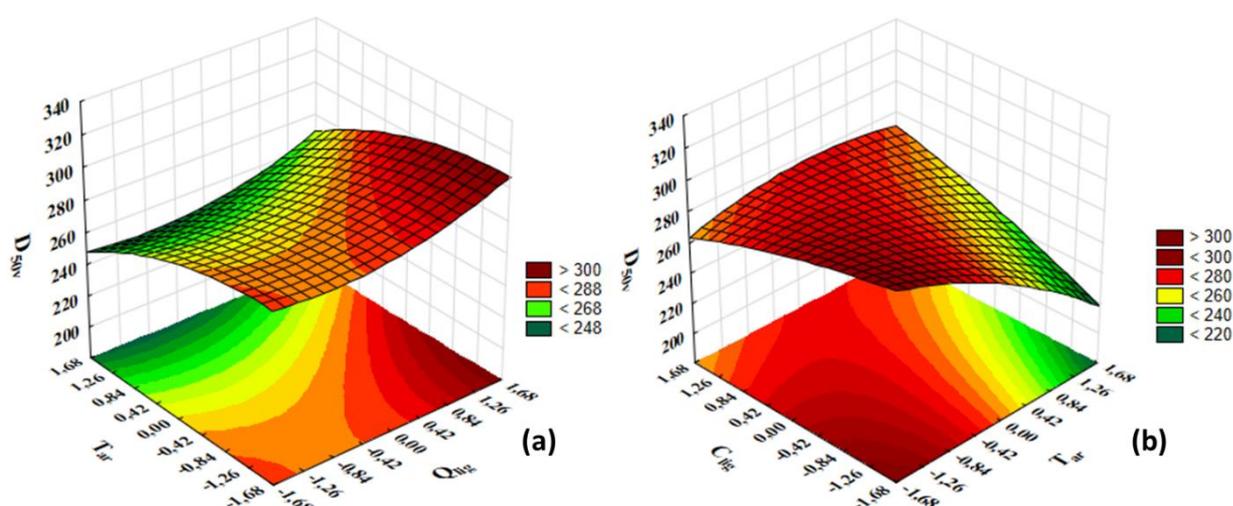


Figura 4.48: Superfícies de resposta para  $D_{50v}$ , para aglomeração de goma arábica com soluções de inulina, em função da  $T_{ar}$  e  $Q_{lig}$  (a) e da  $T_{ar}$  e  $C_{lig}$  (b). A variável não apresentada na superfície de resposta foi mantida no nível 0.

#### 4.8.1.2 Efeito da vazão de ligante

A vazão de ligante influenciou o tamanho final das partículas, uma vez que todos os ensaios com maior  $Q_{lig}$  apresentaram  $D_{50v}$  final maior que aqueles com menor  $Q_{lig}$  mantidas as outras variáveis independentes constantes. Isso pode ser observado nos valores apresentados na Tabela 4.12. Entretanto, a variação no  $D_{50v}$  foi pequena e a maior diferença entre os seus valores foi observada quando houve maior variação na  $Q_{lig}$ . Esses resultados se refletem na Figura 4.45, em que a  $Q_{lig}$  tem efeito significativo e positivo, porém esse efeito é relativamente pequeno frente ao efeito apresentado pela  $T_{ar}$ .

Da mesma maneira que na análise do processo de aglomeração utilizando soluções de goma como ligante, as cinéticas de crescimento foram construídas com a evolução do  $D_{50v}$  em função do tempo relativo de modo que, para um mesmo tempo relativo, a quantidade de ligante adicionada é a mesma independente da vazão utilizada. Cinéticas para ensaios em que houve variação apenas na  $Q_{lig}$  são apresentadas na Figura 4.49. É possível observar que em maiores vazões a taxa de crescimento foi ligeiramente maior, assim como o valor final de  $D_{50v}$  apresentado na Tabela 4.12. A maior diferença entre as curvas de crescimento foi observada para os pontos axiais em relação a  $Q_{lig}$ , quando essa variável foi utilizada em seus níveis extremos inferior e superior. O aumento da  $Q_{lig}$  proporciona mais rápido umedecimento da superfície das partículas o que favorece a união entre as partículas.

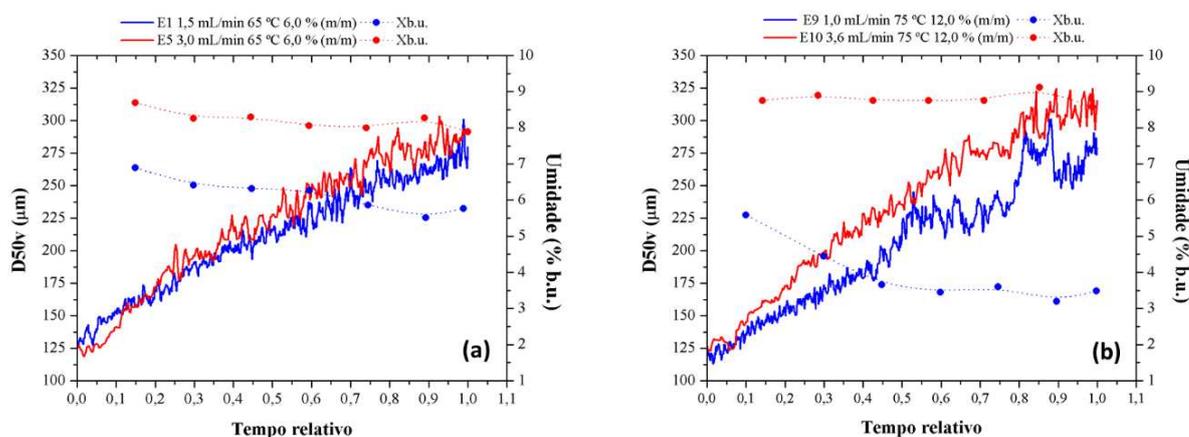


Figura 4.49: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó durante aglomeração com soluções de inulina para os ensaios 1 e 5 (a) e para os ensaios 9 e 10 (b).

A evolução das frações retidas para partículas finas, intermediárias e grossas para os ensaios em que houve variação na  $Q_{lig}$  ocorreu de maneira similar, como pode ser visto na Figura 4.50. Tanto o ensaio 9 ( $Q_{lig}$  igual 1,0 mL/min) quanto o ensaio 10 ( $Q_{lig}$  igual 3,6 mL/min) apresentaram três fases de crescimento e o perfil das três fases foi o mesmo para as duas condições. Entretanto, o ensaio com maior vazão de ligante apresentou maior redução na fração de partículas intermediárias e maior aumento na fração de partículas grossas. O que indica que a taxa de coalescência foi ligeiramente maior para a condição de maior  $Q_{lig}$  em decorrência do maior umedecimento das partículas no interior do leito, ou seja, maior disponibilidade de ligante.

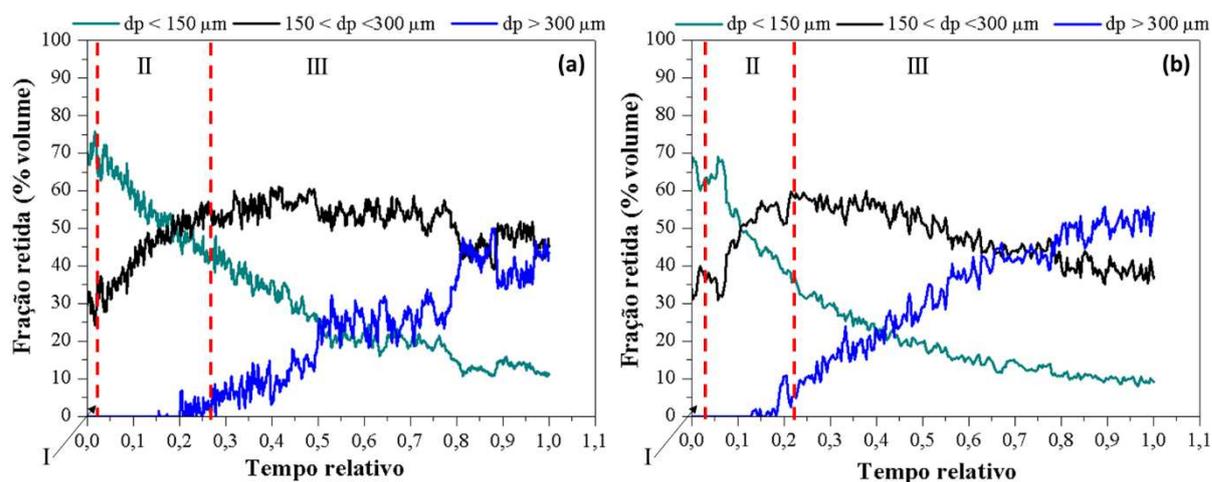


Figura 4.50: Evolução das classes de tamanho das partículas para diferentes valores de  $Q_{lig}$  (a) ensaio 9 (1,0 mL/min, 75°C e 12,0% (m/m)) e (b) ensaio 10 (3,6 mL/min, 75°C e 12,0% (m/m)).

O efeito da variação na  $Q_{lig}$  no tamanho final da partícula pode ser analisado também pelas superfícies de respostas construídas a partir do modelo proposto na Equação 4.5. A Figura 4.48 (a) apresenta os valores esperados para o  $D_{50v}$  final em função da  $Q_{lig}$  e da  $T_{ar}$ . O valor de  $D_{50v}$  aumenta ligeiramente com o aumento da  $Q_{lig}$  como observado experimentalmente e, em menor temperatura, o efeito da  $Q_{lig}$  é mais pronunciado. Nessas condições a taxa de evaporação da água presente na solução ligante é menor fazendo com que a variação na  $Q_{lig}$  proporcione maior variação na umidade do material. A Figura 4.51 apresenta os valores esperados para o  $D_{50v}$  final em função da  $Q_{lig}$  e da  $C_{lig}$ . O  $D_{50v}$  esperado aumenta com o aumento da  $Q_{lig}$ , principalmente para valores acima do nível +1 independente da concentração da solução utilizada.

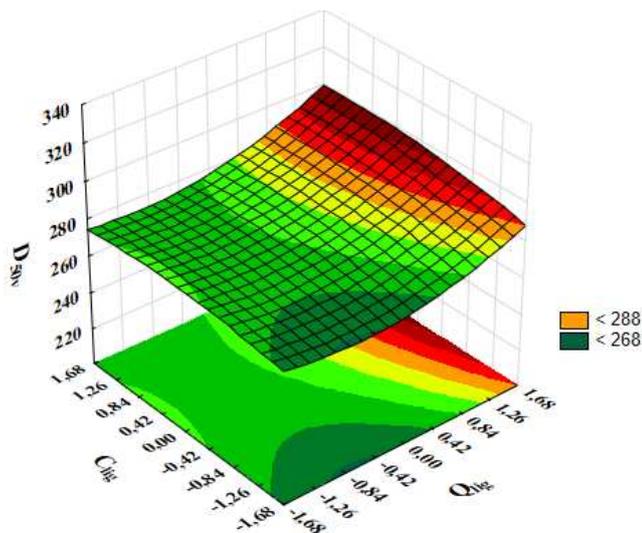


Figura 4.51: Superfícies de resposta para  $D_{50v}$ , para aglomeração de goma arábica com soluções de inulina, em função da  $Q_{lig}$  e  $C_{lig}$ . A variável não apresentada na superfície de resposta foi mantida no nível 0.

#### 4.8.1.3 Efeito da concentração da solução

A concentração da solução de inulina isoladamente não influenciou o  $D_{50v}$  final como pode ser visto nos valores apresentados na Tabela 4.12 para os ensaios em que ocorreu variação apenas nessa variável. A cinética de crescimento da partícula também foi pouco influenciada pela  $C_{lig}$  para a aglomeração de goma arábica utilizando soluções de inulina, como apresentado na Figura 4.52, em quem ensaios com diferentes concentrações apresentaram cinéticas de crescimento muito parecidas. Até mesmo para a comparação entre os ensaios 13 e 14 (Figura 4.52 (c)), em que houve a maior variação na  $C_{lig}$  as cinéticas de crescimento foram semelhantes e o  $D_{50v}$  final para o ensaio 14, maior  $C_{lig}$ , foi apenas pouco maior que aquele apresentado para o ensaio 13, menor  $C_{lig}$ .

Esse resultado também é refletido no gráfico de Pareto, na Figura 4.45, onde a  $C_{lig}$  isoladamente não apresentou efeito estatisticamente significativo em um intervalo de confiança igual a 90,0%. Todavia, apesar de a  $C_{lig}$  isoladamente não apresentar efeito significativo, a sua interação com a  $T_{ar}$  foi significativa para o valor de  $D_{50v}$  final. Dessa forma, é interessante observar a Figura 4.48 (b) que apresenta a superfície de resposta para os valores de  $D_{50v}$  a partir do modelo proposto (Equação 4.5). Na superfície de resposta podemos perceber que quando temperaturas maiores que  $75^{\circ}C$  (nível 0) forem utilizadas, o  $D_{50v}$  esperado será maior se maiores  $C_{lig}$  forem aplicadas.

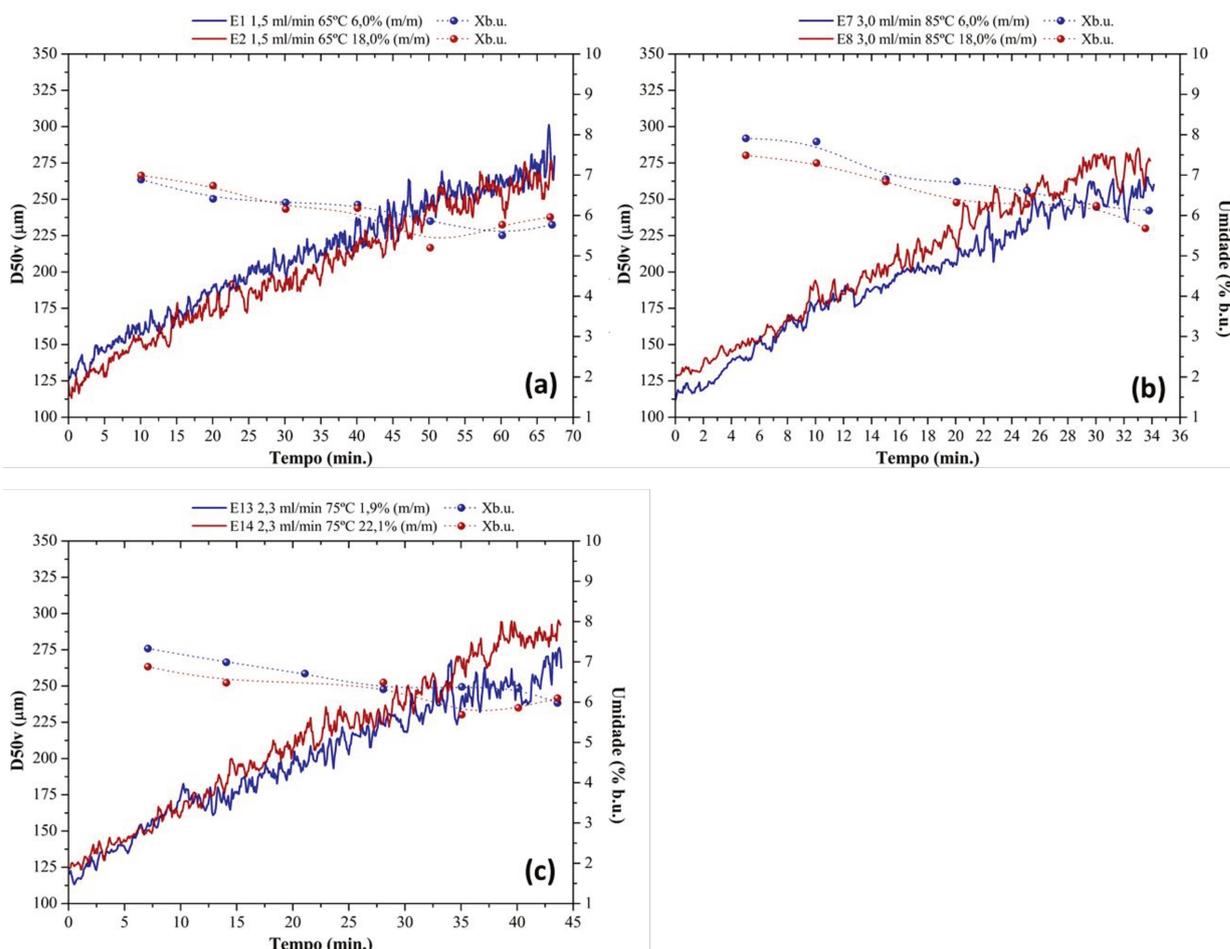


Figura 4.52: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade da goma arábica em pó durante aglomeração com soluções de inulina para os ensaios 1 e 2 (a), para os ensaios 7 e 8 (b) e para os ensaios 13 e 14.

#### 4.8.2 Rendimento do processo

Com base nos valores apresentados na Tabela 4.12, o rendimento do processo aumentou com o aumento da  $Q_{\text{lig}}$ . Todos os ensaios com  $Q_{\text{lig}}$  igual a 1,5 mL/min apresentaram  $\eta$  abaixo de 50,0%, enquanto que todos os ensaios com  $Q_{\text{lig}}$  igual a 3,0 mL/min apresentaram  $\eta$  maior que 50,0%. Além disso, o menor  $\eta$  (38,3%) foi observado para o nível extremo inferior da  $Q_{\text{lig}}$  e o maior  $\eta$  (70,4%) para o nível extremo superior dessa variável. Com relação à  $T_{\text{ar}}$ , de maneira geral, maiores níveis dessa variável resultaram em menor rendimento. No entanto, na comparação entre os ensaios 6 e 8, o ensaio 8, em que foi utilizada maior temperatura, apresentou maior rendimento. Variações na  $C_{\text{lig}}$  parecem não alterar o rendimento do processo, pois ensaios com diferentes níveis de  $C_{\text{lig}}$  apresentaram rendimentos muito semelhantes.

O diagrama de Pareto apresentado na Figura 4.53 exibe a significância estatística para as três variáveis independentes bem como para as interações entre elas a um intervalo de confiança de 90,0%. Os efeitos estatisticamente significativos localizam-se à direita do limiar de significância ( $p < 0,1$ ).

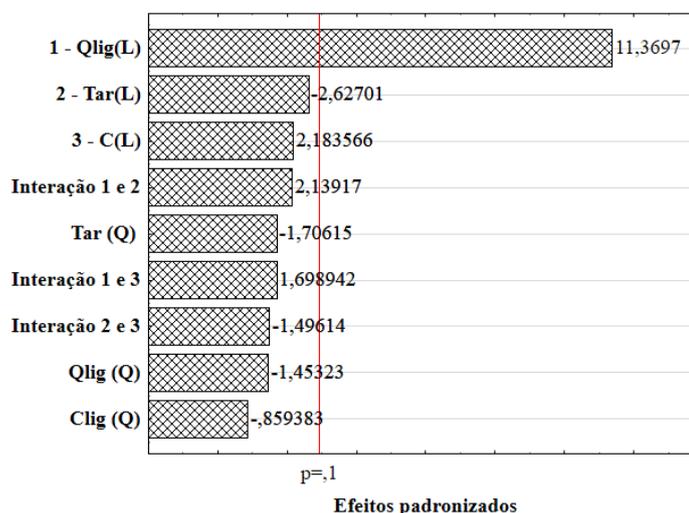


Figura 4.53: Diagrama de Pareto para os efeitos das variáveis  $Q_{lig}$  (1),  $T_{ar}$  (2) e  $C_{lig}$  (3) no rendimento do processo de aglomeração de goma arábica com soluções da inulina.

Os resultados apresentados na Figura 4.53 confirmam a observação com base nos dados da Tabela 4.12 sobre a influência das variáveis independentes no  $D_{50v}$  final. Eles indicam que dentre as variáveis independentes a  $Q_{lig}$ , foi a única variável com efeito estatisticamente significativo. Esse resultado é diferente daquele apresentado quando soluções de goma arábica foram utilizadas como ligante, quando todas as variáveis independentes foram estatisticamente significativas. Isso pode estar relacionado a menor diferença entre o tamanho final da partícula para ensaios com diferentes  $C_{lig}$  para as soluções de inulina, discutido anteriormente, e também à menor variação na umidade do material em decorrência da variação da  $T_{ar}$  quando comparada às situações de variação na  $Q_{lig}$ , como pode ser visto na comparação entre os ensaios 9 e 10 e na comparação entre os ensaios 11 e 12.

No item seguinte será apresentada uma análise do efeito da  $Q_{lig}$ , já que esta foi a única variável com efeito significativo. Além dos valores observados, as superfícies de respostas construídas a partir do modelo polinomial para variáveis codificadas (Equação 4.6) também foram analisadas. Isso foi possível, pois os resíduos apresentaram distribuição normal, sendo o modelo testado estatisticamente por ANOVA e pelo teste F de Fischer com intervalo

de confiança de 90,0%. O  $F_{\text{calc}}$  para a regressão, 13,11, foi maior que o  $F_{\text{tab}}$ , 2,72 o que torna o modelo significativo e o  $F_{\text{calc}}$  para a falta de ajuste, 1,43, foi menor do que o  $F_{\text{tab}}$ , 9,29, ou seja, a falta de ajuste não é significativa e o modelo pode ser considerado preditivo. O coeficiente de determinação ( $R^2$ ) foi igual 94,4%. Apesar de apenas a  $Q_{\text{lig}}$  ser significativa, assim como nos casos anteriores, o modelo foi utilizado com todos os parâmetros. É importante salientar que as variáveis independentes no modelo devem estar em valores codificados e ele é válido para os limites experimentais utilizados neste estudo.

$$\eta = 59,08 + 8,57Q_{\text{lig}} - 1,20Q_{\text{lig}}^2 - 1,99T_{\text{ar}} - 1,41T_{\text{ar}}^2 + 1,65C_{\text{lig}} - 0,71C_{\text{lig}}^2 \quad 4.6$$

$$+ 2,11Q_{\text{lig}} \cdot T_{\text{ar}} + 1,67Q_{\text{lig}} \cdot C_{\text{lig}} - 1,47T_{\text{ar}} \cdot C_{\text{lig}}$$

A Figura 4.54 apresenta o rendimento do processo e a formação de torrões para cada um dos ensaios realizados. Dentre as condições testadas, os ensaios que apresentaram maiores rendimentos foram aqueles com menor fração de torrões. Ou seja, além do arraste de material a formação de torrões influenciou o  $\eta$  obtido. É possível observar o efeito da  $Q_{\text{lig}}$  também na fração de torrões. Os ensaios 5 a 8, em que foi utilizada a  $Q_{\text{lig}}$  no nível +1 apresentaram menor fração de torrões, quando comparados aos ensaios 1 a 4, em que foi utilizada a  $Q_{\text{lig}}$  no nível -1.

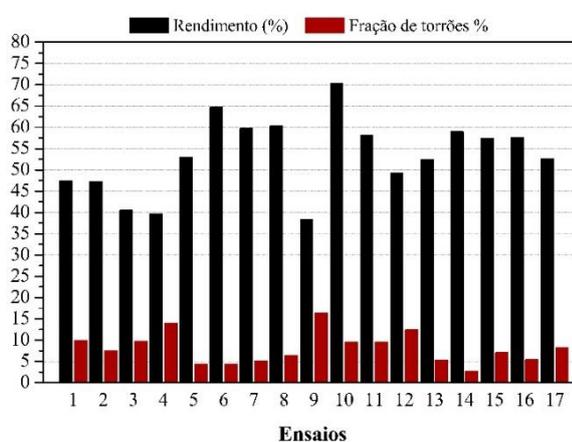


Figura 4.54: Rendimento e fração de torrões para os ensaios de aglomeração utilizando solução de inulina como ligante.

#### 4.8.2.1 Efeito da vazão de ligante

Assim como no processo de aglomeração utilizando soluções de goma arábica, para a aglomeração utilizando soluções de inulina, o aumento da vazão de ligante resultou em aumento do rendimento do processo. Isso pode ser observado na Tabela 4.12 e na Figura 4.54. Nessa figura, é possível perceber que os ensaios com vazão igual a 1,5 mL/min (ensaios de 1 a 4) e o ensaio com vazão igual a 1,0 mL/min (ensaio 9) apresentaram menores rendimentos quando comparados aos ensaios de maior vazão: ensaios de 5 a 8 (3,0 mL/min), ensaios de 11 a 17 (2,3 mL/min) e ensaio 10 (3,6 mL/min). Os ensaios de menor e maior vazão foram os que apresentaram menor e maior rendimento, respectivamente. Esse resultado está relacionado ao rápido aumento das partículas quando maiores vazões são utilizadas, ficando o material menos suscetível ao arraste.

A Figura 4.55 apresenta a distribuição de tamanho de partícula para a matéria-prima e para os ensaios 9 e 10, ensaios em que foram utilizados os extremos inferior e superior para  $Q_{lig}$ , respectivamente. As condições utilizadas no ensaio 10 proporcionaram maior taxa de crescimento da partícula (Figura 4.49 (b)) e maior alteração na distribuição do tamanho da partícula. É possível perceber que após injetados 20,0% da solução ligante, esse ensaio, de maior  $Q_{lig}$ , apresenta distribuição de tamanho mais ampla e menor fração de partículas menores que 150  $\mu\text{m}$  do que o ensaio 9. Essas características resultam em menor arraste de material e em maior rendimento do processo.

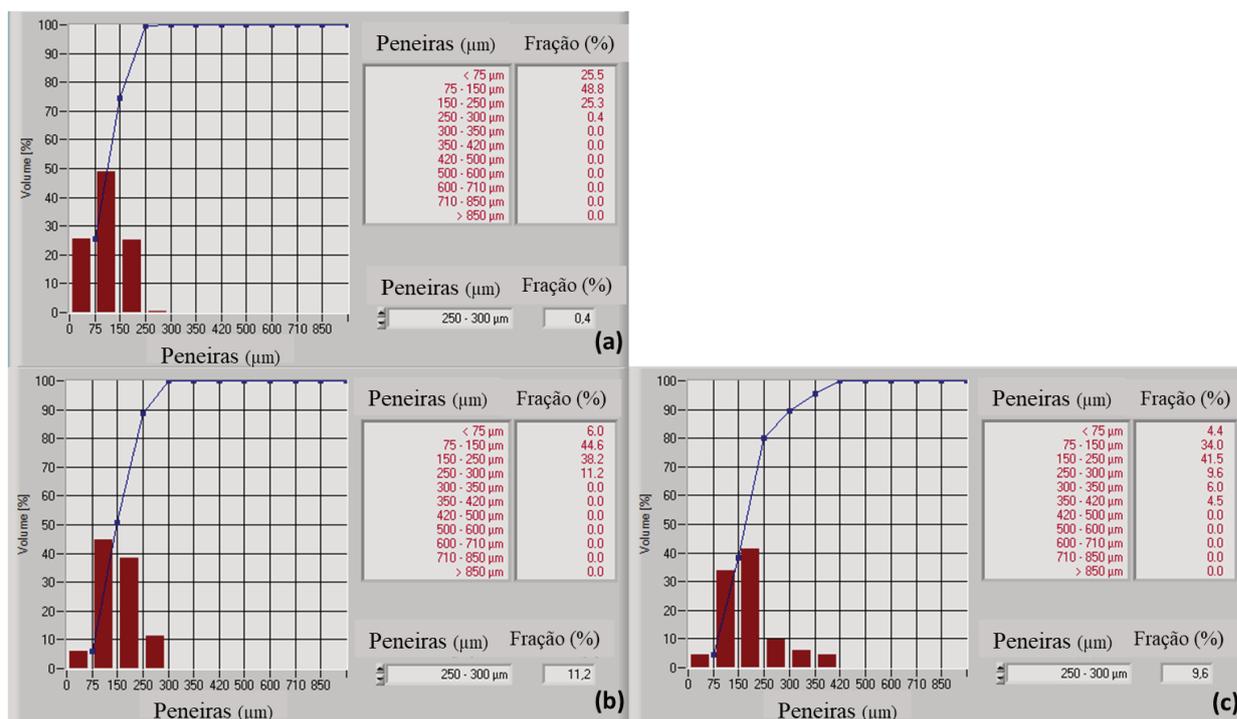


Figura 4.55: Distribuição de tamanho em termos de fração retida e curva cumulativa obtidas (a) antes do início da aglomeração pela sonda Parsum e para um tempo relativo de 20,0% para os ensaios (b) 9 e (c) 10

#### 4.8.3 Otimização da aglomeração utilizando solução de inulina como ligante

As condições ótimas do processo foram obtidas a partir dos modelos propostos para rendimento e tamanho da partícula utilizando o programa *Solver toolbox* (Microsoft Excel v.2016). Os níveis dos parâmetros do processo foram determinados de modo que o tamanho da partícula fosse máximo. Os valores obtidos foram +1,68 (3,6 mL/min), 0,00 (75 °C) e +1,22 (19,3% (m/m) para  $T_{ar}$ ,  $Q_{lig}$  e  $C_{lig}$ , respectivamente.

Um ensaio foi realizado nas condições determinadas como ótimas para validação dos resultados preditos. Os valores preditos foram 299,7 µm para o tamanho médio da partícula e 71,0% de rendimento. Os valores obtidos no ensaio de validação foram  $293,8 \pm 4,3$  µm e 66,3%. Os modelos podem ser considerados válidos, uma vez que os desvios dos valores obtidos experimentalmente foram baixos em relação àqueles preditos, 2,0% para o  $D_{50v}$  e 6,6% para o rendimento. A umidade final do material aglomerado nestas condições foi igual a  $9,0 \pm 0,23\%$  (b.u.), abaixo do limite estabelecido de 10,0% (b.u.). A fração de torrões produzidos foi

baixa, comparada aos valores obtidos para os ensaios do planejamento experimental, igual a 6,4%.

#### 4.8.4 Caracterização do produto aglomerado

##### 4.8.4.1 Distribuição de tamanho das partículas

O processo de aglomeração alterou a distribuição de tamanho das partículas. O produto obtido nas condições do ponto ótimo praticamente não apresenta partículas menores que 75  $\mu\text{m}$  e partículas com  $75 \mu\text{m} < d_p < 150 \mu\text{m}$  que antes representavam quase 50,0% do material passaram a ser de aproximadamente apenas 10,0%, como mostrado na Figura 4.56. Após o processo de aglomeração, a distribuição de tamanho de partícula é mais larga e as maiores partículas tem entre 500 e 600  $\mu\text{m}$ . Assim como para as diferentes condições testadas, na condição ótima, a maior fração de partículas apresentou tamanho entre 150 e 250  $\mu\text{m}$ .

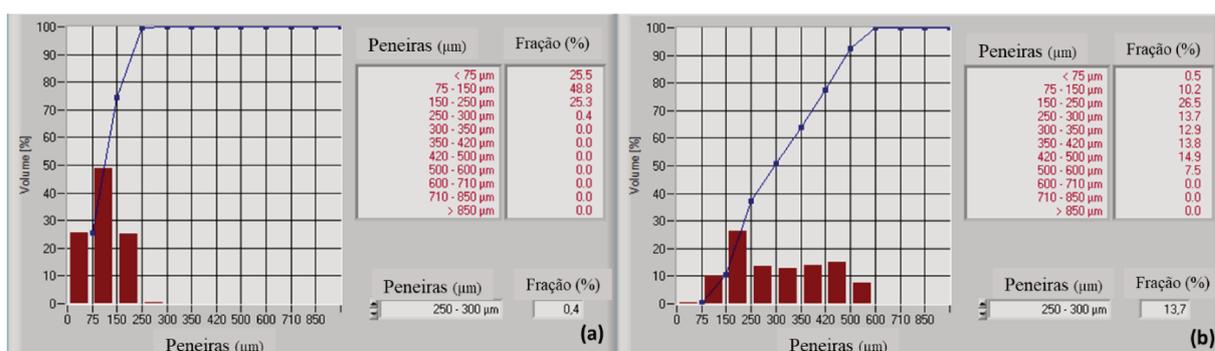


Figura 4.56: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica (a) e para a goma arábica aglomerada com soluções inulina nas condições do ponto ótimo (b).

Quanto maior o  $D_{50v}$  final apresentado, maior a amplitude da distribuição de tamanho. A Figura 4.57 apresenta a distribuição de tamanho para os produtos aglomerados que apresentaram o menor  $D_{50v}$  final (ensaio 12), o  $D_{50v}$  final intermediário (ensaio 8) e o maior  $D_{50v}$  final (ensaio 10). O ensaio 12, que apresentou menor  $D_{50v}$  final, apresentou distribuição de tamanho mais estreita e mais da metade das partículas com  $D_{50v}$  menor que 150  $\mu\text{m}$ . As maiores partículas produzidas nestas condições foram as maiores que 420  $\mu\text{m}$ . Os ensaios 8 e 10 apresentaram a mesma amplitude de distribuição de tamanho, mas o ensaio 10 apresentou menor fração de partículas com  $D_{50v}$  menor que 150  $\mu\text{m}$  e fração um pouco maior de partículas maiores que 500  $\mu\text{m}$ . Esses resultados são coerentes, dado que o material com maior fração de partículas maiores apresentará maior tamanho médio de partícula.

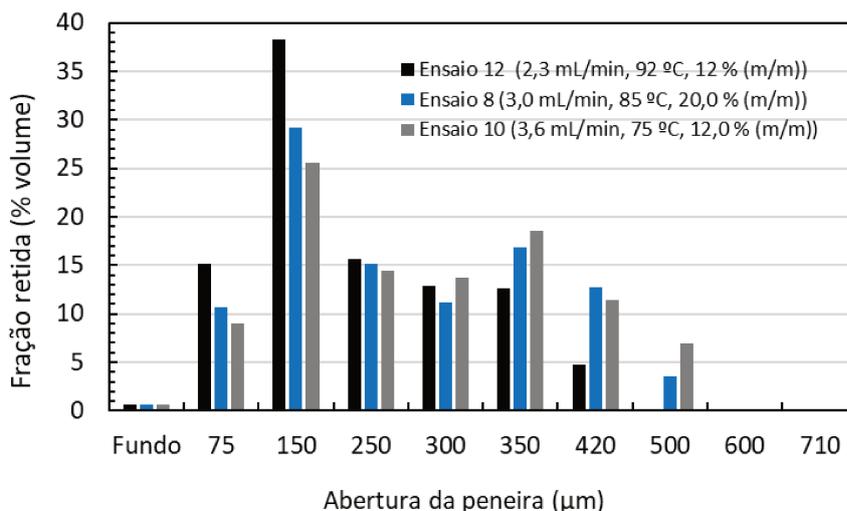


Figura 4.57: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica aglomerada com soluções de inulina nos ensaios 12, 8 e 10.

#### 4.8.4.2 Tempo de instantaneização e capacidade de dispersão

Os produtos obtidos pela aglomeração de goma arábica com soluções de inulina apresentaram tempo de submersão muito próximos entre si, sendo o menor tempo igual a 1,8 s e o maior 2,5 s. Esses valores são muito inferiores ao tempo apresentado pela matéria-prima, que mesmo após 600 s não apresentou completa submersão. A Figura 4.58 apresenta imagens do teste de instantaneização realizado para a matéria-prima e para a goma arábica aglomerada com solução de inulina nas condições ótimas. É possível observar que o material é rapidamente umedecido e submerge por completo, mas não ocorre a sua dispersão.

O teste de capacidade de dispersão foi realizado conforme o item 3.3.5 e as imagens são mostradas na Figura 4.59. Da mesma forma que aconteceu quando solução de goma foi utilizada como ligante, a goma arábica aglomerada com solução de inulina apresentou boa capacidade de dispersão e não houve a formação de grumos.

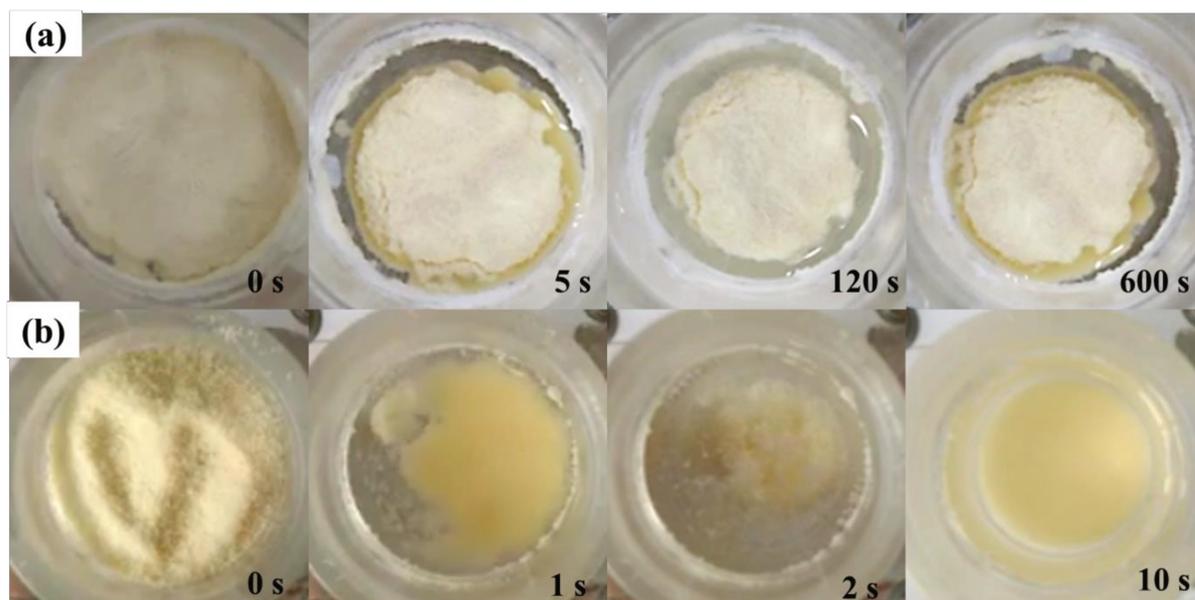


Figura 4.58: Teste de instantaneização para (a) goma arábica não aglomerada, (b) goma arábica aglomerada com solução de inulina nas condições ótimas.

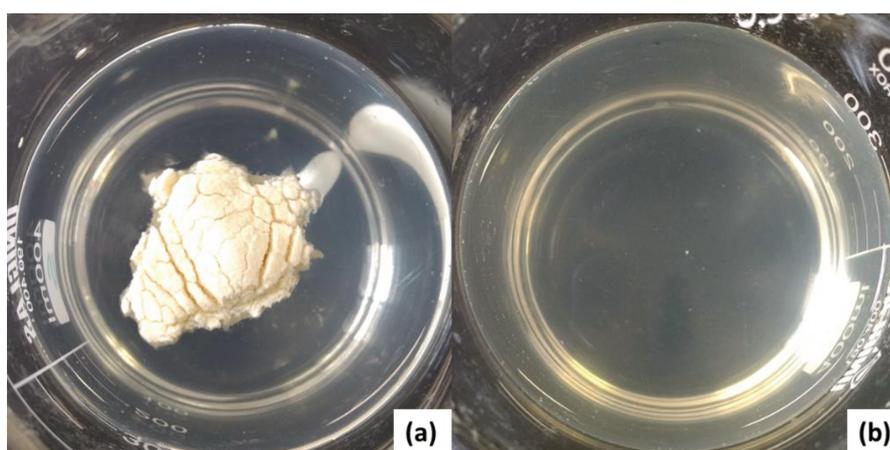


Figura 4.59: Dispersão em água (a) matéria-prima e (b) goma arábica aglomerada com soluções de inulina nas condições ótimas.

#### 4.8.4.3 Propriedades de fluidez

A propriedade de fluidez para a goma arábica aglomerada com soluções de inulina apresentou uma pequena melhora quando comparada a matéria-prima, mas em apenas quatro condições houve mudança de nível de moderado para bom escoamento como mostrado na Tabela 4.13. Assim como na aglomeração soluções da própria goma, os ensaios que

proporcionaram condições mais secas e material com  $X_{b,u}$  final menores foram os que apresentaram também melhor nível de fluidez.

Tabela 4.13:  $I_{Carr}$  e nível de fluidez para a matéria-prima e para os produtos obtidos nas condições do planejamento experimental para aglomeração de goma arábica com soluções de inulina.

Ensaio	$Q_{lig}$ (mL/min)	$T_{ar}$ (°C)	$C_{lig}$ %	$\rho_b$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\rho_t$ (g/cm <sup>3</sup> )	$I_{Carr}$ (%)	Nível de fluidez
MP	-	-	-	0,43 ± 0,01	0,59 ± 0,02	27,7 ± 1,3	Moderado
1	1,5	65	6,0	0,37 ± 0,01	0,47 ± 0,00 <sup>5</sup>	22,2 ± 1,1	Moderado
2	1,5	65	18,0	0,35 ± 0,02	0,47 ± 0,00 <sup>6</sup>	24,2 ± 2,6	Moderado
3	1,5	85	6,0	0,43 ± 0,01	0,53 ± 0,02	19,5 ± 0,8	Bom escoamento
4	1,5	85	18,0	0,37 ± 0,00 <sup>1</sup>	0,46 ± 0,02	19,9 ± 3,1	Bom escoamento
5	3,0	65	6,0	0,30 ± 0,02	0,41 ± 0,03	25,4 ± 1,8	Moderado
6	3,0	65	18,0	0,34 ± 0,01	0,44 ± 0,02	23,1 ± 1,2	Moderado
7	3,0	85	6,0	0,32 ± 0,02	0,42 ± 0,01	24,2 ± 1,7	Moderado
8	3,0	85	18,0	0,29 ± 0,02	0,39 ± 0,01	26,5 ± 2,9	Moderado
9	1,0	75	12,0	0,42 ± 0,00 <sup>2</sup>	0,52 ± 0,01	19,1 ± 0,5	Bom escoamento
10	3,6	75	12,0	0,31 ± 0,01	0,38 ± 0,02	20,4 ± 3,1	Moderado
11	2,3	58	12,0	0,28 ± 0,01	0,38 ± 0,02	25,8 ± 1,7	Moderado
12	2,3	92	12,0	0,40 ± 0,01	0,50 ± 0,02	19,4 ± 0,5	Bom escoamento
13	2,3	75	1,9	0,31 ± 0,01	0,41 ± 0,01	25,4 ± 2,4	Moderado
14	2,3	75	22,1	0,38 ± 0,00 <sup>3</sup>	0,48 ± 0,01	21,5 ± 1,4	Moderado
15	2,3	75	12,8	0,34 ± 0,00 <sup>4</sup>	0,44 ± 0,01	22,7 ± 1,8	Moderado
16	2,3	75	12,8	0,32 ± 0,02	0,41 ± 0,00 <sup>7</sup>	21,7 ± 4,4	Moderado
17	2,3	75	12,8	0,32 ± 0,01	0,42 ± 0,01	22,4 ± 0,6	Moderado
Ponto ótimo	3,6	75	19,3	0,30 ± 0,01	0,40 ± 0,01	24,6 ± 0,6	Moderado

\*<sup>1</sup>0,003; <sup>2</sup>0,003; <sup>3</sup>0,003; <sup>4</sup>0,002; <sup>5</sup>0,003; <sup>6</sup>0,005; <sup>7</sup>0,004.

#### 4.8.4.4 Microscopia eletrônica de varredura

As micrografias eletrônicas de varredura obtidas para aumentos de 100x, 500x, 1000x e 5000x para a matéria-prima e para o produto aglomerado com solução de inulina nas condições ótimas são apresentadas na Figura 4.60. Assim como para aglomeração com soluções de goma arábica, houve alteração das partículas em decorrência do processo de

aglomeração. As partículas aglomeradas são menos arredondadas e mais irregulares do que a goma arábica não aglomerada e não é observada a presença de partículas muito pequenas como na matéria-prima.

As partículas aglomeradas parecem bem consolidadas e não são aparentemente porosas como pode ser visto nas Figura 4.60 (F) e (G). Entretanto, apesar disso apresentaram umedecimento e imersão muito mais rápidos que a matéria-prima. Os pontos de união entre as partículas não apresentam rachaduras o que indica estabilidade do aglomerado formado. A Figura 4.60 apresenta a ampliação de um desses pontos.

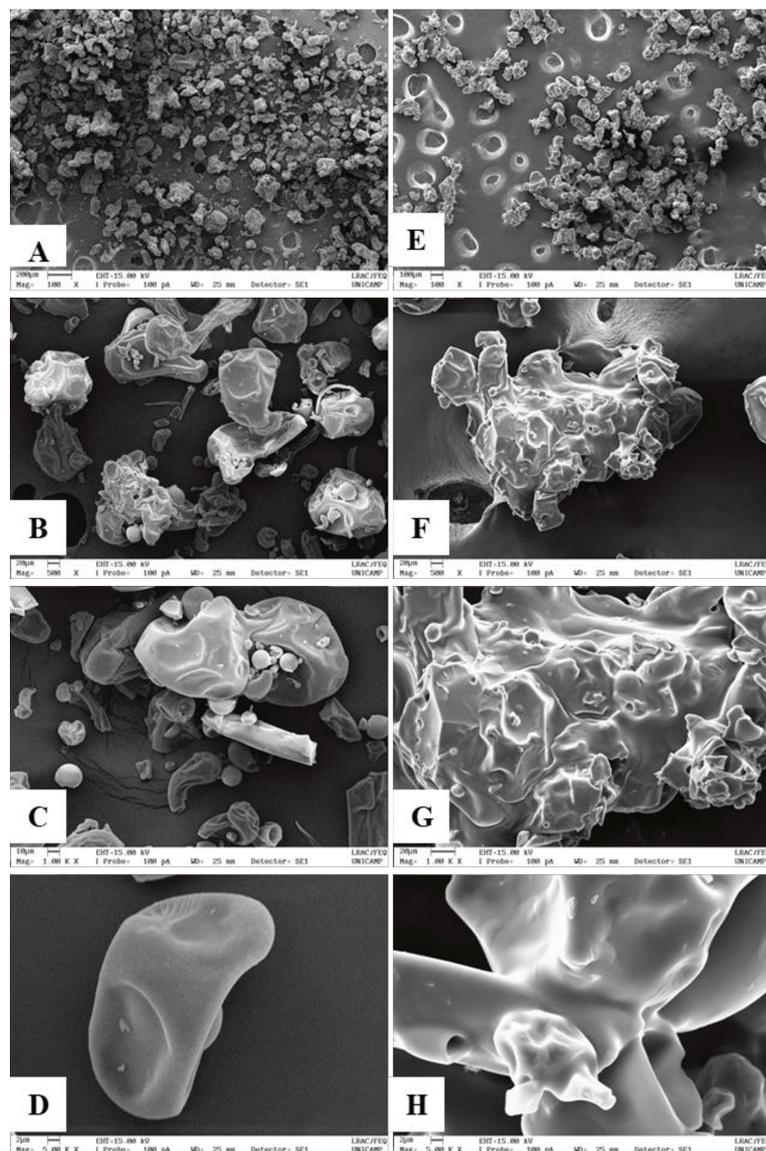


Figura 4.60: Micrografias da matéria-prima (A, B, C e D) e para a goma arábica aglomerada nas condições ótimas (E, F, G e H).

#### 4.8.4.5 Quantificação de inulina no produto aglomerado

A quantificação de inulina inserida na goma arábica aglomerada foi medida, como descrito no item 3.3.7, com o objetivo de verificar se ocorreu de fato a sua incorporação ao produto aglomerado. Essa análise foi realizada apenas para aqueles ensaios em que possivelmente a quantidade de inulina incorporada a goma arábica foi maior: ensaio 10, que apresentou maior tamanho, e ensaio 14, no qual foi utilizada solução mais concentrada como ligante e para o produto obtido nas condições ótimas.

Os ensaios foram realizados em duplicata conforme descrito no item 3.3.7 e os valores são apresentados na Tabela 4.14. A concentração de inulina ( $C_{in}$ , %) refere-se à concentração de inulina em toda a massa final do produto aglomerado. Os resultados obtidos são coerentes uma vez que o teor de inulina acompanhou a concentração da solução utilizada, quanto maior a concentração da solução maior o teor de inulina incorporada ao produto.

Tabela 4.14: Teor de inulina no produto aglomerado.

Ensaio	$Q_{lig}$ (mL/min)	$T_{ar}$ (°C)	$C_{lig}$ %	$C_{in}$ (%)
10	3,6 (+1,68)	75 (0)	12,0 (0)	$2,71 \pm 0,04$
14	2,3 (0)	75 (0)	22,1 (+1,68)	$4,68 \pm 0,15$
Ponto ótimo	3,6 (+1,68)	75 (0)	19,3 (+1,22)	$4,41 \pm 0,08$

É possível também estabelecer uma relação entre as condições experimentais, apresentadas na Tabela 4.12, e o aproveitamento da inulina aspergida. Este aproveitamento foi calculado considerando a concentração de inulina no aglomerado e o rendimento do processo. Como esperado, o aproveitamento da inulina aspergida dependeu do rendimento do processo, mas também foi dependente da umidade do aglomerado. O ensaio 10 e o ponto ótimo que apresentaram os melhores rendimentos, 70,4% e 66,3%, respectivamente, e maiores  $X_{b,u.}$ , 8,6% (ensaio 10) e 9,0% (ponto ótimo), dentre os três ensaios analisados, também apresentaram melhor aproveitamento de inulina. Para o ensaio 10, 63,6% da inulina aspergida foi incorporada à goma arábica aglomerada e, para o ponto ótimo, esse valor foi de 60,6%. O ensaio 14, dentre três ensaios analisados, foi o que apresentou menor rendimento (59,0%) e menor  $X_{b,u.}$  (6,6%), para esse ensaio aproveitamento da inulina foi menor, igual a 50,0%.

Esse resultado relaciona-se às condições mais úmidas no interior do leite, que proporcionaram menor perda de inulina pela rápida secagem da solução antes que entrasse em contato com o material e também por arraste junto ao material aglomerado. Essa observação é reforçada pelo fato de que o ensaio 10 e o ponto ótimo foram os que produziram aglomerados de maior tamanho. Nesses ensaios houve maior umedecimento das partículas, maior formação de pontes líquidas e, por consequência, maior formação de pontes sólidas entre as partículas resultando em partículas maiores. Sendo assim, foi possível maior incorporação da inulina presente na solução ligante no material em pó.

#### 4.8.4.6 Estabilidade da emulsão

A estabilidade da emulsão formada pela goma arábica aglomerada com solução de inulina nas condições ótimas também foi comparada com aquela apresentada pela matéria-prima como feito para o produto aglomerado com soluções da própria goma. A emulsão formada com o produto aglomerado com solução de inulina também apresentou três camadas diferentes: soro, emulsão e creme como mostrado na Figura 4.61.

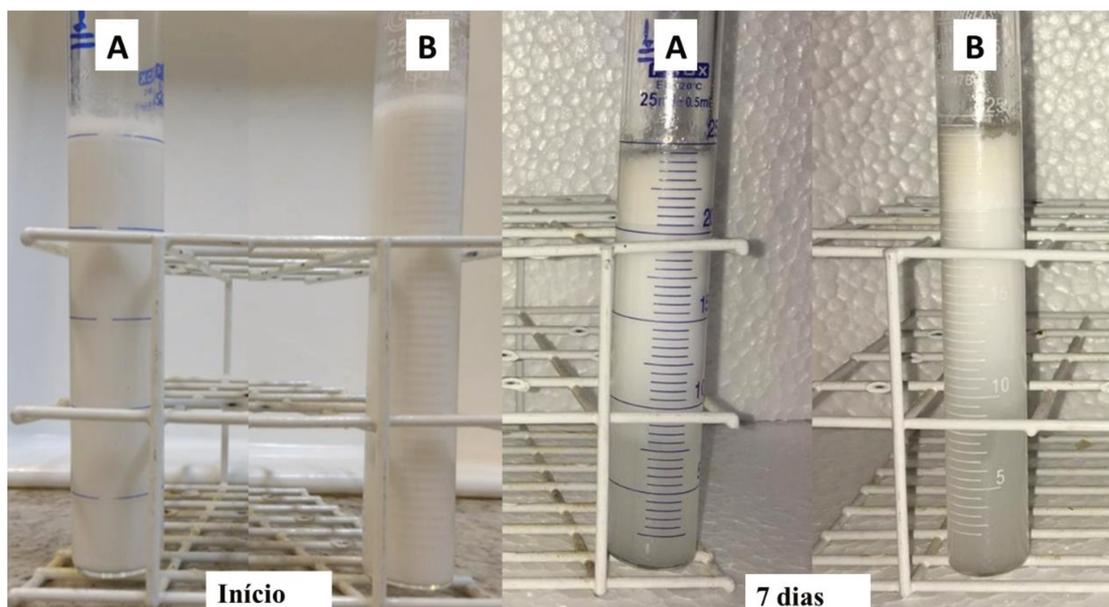


Figura 4.61: Emulsões preparadas com goma arábica não aglomerada (A) e aglomerada com solução de inulina nas condições ótimas (B).

O índice de formação de creme, calculado de acordo com a Equação 3.1, para o produto aglomerado foi igual a 81,8% enquanto que para a matéria-prima foi igual a 64,0%. Isso indica que a emulsão formada com o produto aglomerado com solução de inulina foi menos estável que aquela formada com a matéria-prima, apresentando maior desprendimento de óleo. A diminuição na estabilidade da emulsão pode estar relacionada à presença de inulina no material, uma vez que a goma arábica tem melhores propriedades emulsificantes.

### 4.9 COMPARAÇÃO ENTRE O PROCESSO DE AGLOMERAÇÃO COM SOLUÇÕES DE GOMA ARÁBICA E SOLUÇÕES DE INULINA

Foi possível otimizar o processo de aglomeração para os dois tipos de ligantes utilizados com aumento no tamanho da partícula para  $336,6 \pm 9,1 \mu\text{m}$  e  $293,8 \pm 4,3 \mu\text{m}$  para

solução de goma arábica e solução de inulina, respectivamente. O rendimento do processo nas condições ótimas foi considerado satisfatório e com valores muito próximos para os dois ligantes, sendo 68,0% para goma arábica e 66,3% para inulina. Os produtos obtidos apresentaram umidade aceitável, o que garante estabilidade durante o armazenamento,  $7,6 \pm 0,24$  (% b.u.) para goma arábica e  $9,0 \pm 0,23$  (% b.u.) para inulina.

A seguir são apresentadas as comparações para o tamanho final da partícula e propriedades do produto aglomerado.

#### 4.9.1 Influência do tipo de ligante no $D_{50v}$ final e na distribuição do tamanho de partícula

O  $D_{50v}$  final médio para diferentes ligantes em suas diferentes concentrações utilizadas neste estudo é apresentado na Figura 4.62. As condições A, B, C e D são as diferentes condições de temperatura e de vazão de ligante utilizadas: A, 1,5 ml/min e 65 °C; B, 1,5 mL/min e 85 °C; C, 3,0 mL/min e 65 °C e D, 3,0 mL/min e 85 °C.

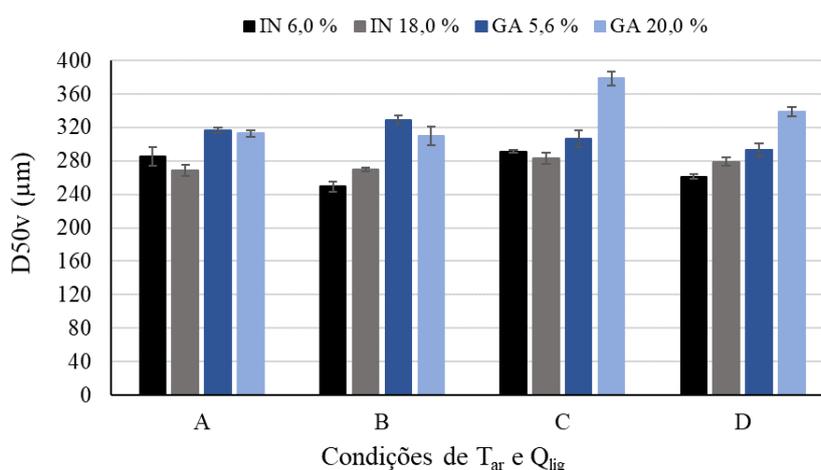


Figura 4.62: Influência do tipo de ligante no  $D_{50v}$ .

As soluções de goma arábica apresentaram menor tensão superficial e maior ângulo de contato do que as soluções de inulina. Apesar disso, de maneira geral, maiores valores de  $D_{50v}$  foram encontrados quando soluções de goma arábica foram utilizadas como ligante. Esses resultados são atribuídos ao aumento na viscosidade da solução que possibilita maior absorção da energia cinética do choque entre as partículas e diminui a probabilidade de ricocheteamento entre as partículas (Ennis et al., 1991). Outra característica da solução de goma arábica que

pode ter contribuído para formação de pontes líquidas mais resistentes e, conseqüentemente, maior taxa de aglomeração é o seu comportamento reológico, ou seja, a presença de tensão residual que pode representar uma resistência ao espalhamento da gota na superfície da partícula e fazer com que ela fique disponível para formação de pontes líquidas por mais tempo.

A diminuição do ângulo de contato nem sempre será vantajosa para a coalescência no processo de aglomeração, principalmente em partículas porosas, pois pode significar menor tempo de disponibilidade do ligante na superfície da partícula para formação de pontes líquidas. Assim como observado neste estudo, (Hirata, 2015), observou que o aumento do ângulo de contato favoreceu o crescimento dos grânulos de pectina.

Com relação às cinéticas de crescimento dos grânulos, nos momentos iniciais do processo a taxa de crescimento foi semelhante para os dois tipos de ligantes utilizados. Todavia, na segunda metade do processo os grânulos formados com soluções de goma arábica apresentaram maior taxa de crescimento (Figura 4.63 (a)). Esse comportamento é também atribuído à maior viscosidade da solução ligante e, conseqüentemente, a formação de pontes líquidas mais resistentes. À medida que o grânulo aumenta é preciso pontes líquidas mais fortes entre as partículas para formação de grânulos estáveis.

O efeito da viscosidade da solução pode ser visualizado na Figura 4.63 (b) que apresenta as cinéticas de crescimento do grânulo para a condição D. Nessa condição, em que foi utilizada maior vazão de ligante, o umedecimento da superfície das partículas é mais rápido e o crescimento das partículas será mais favorecido quanto maior for a viscosidade da solução.

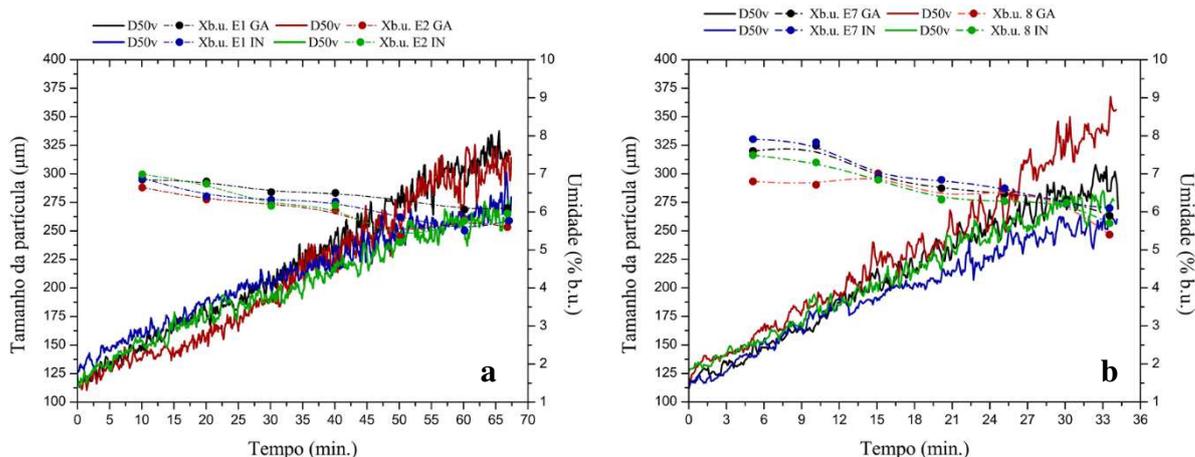


Figura 4.63: Cinética de crescimento do  $D_{50v}$  e evolução da umidade para as condições a) A (ensaio 1) e B (ensaio 2) e b) C (ensaio 7) e D (ensaio 8).

O favorecimento do crescimento dos grânulos pelas soluções de goma também pode ser visualizado na Figura 4.64. Nela é possível observar que menores frações de finos e maiores frações de partículas maiores que 420  $\mu\text{m}$  estão presentes na goma aglomerada com soluções da própria goma.

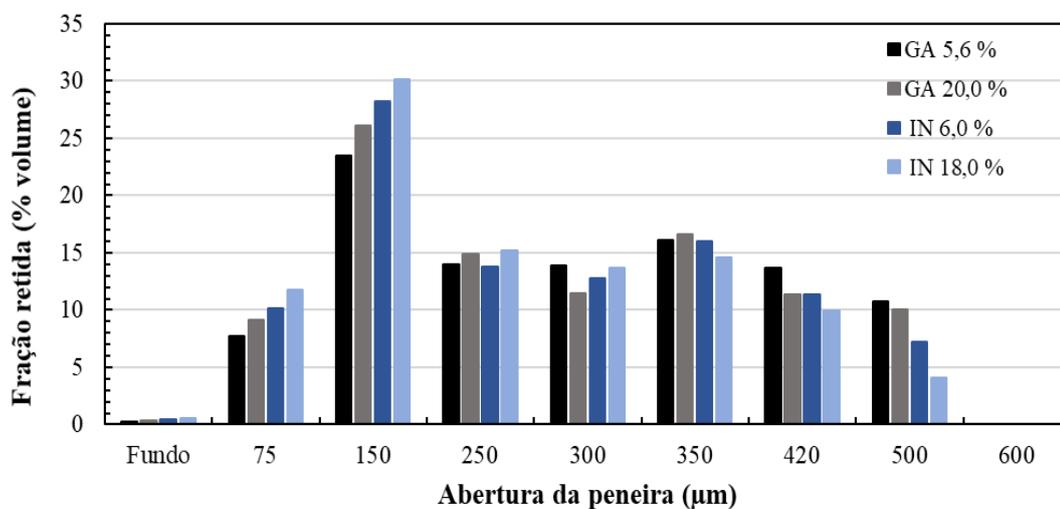


Figura 4.64: Distribuição de tamanho de partícula para a goma arábica aglomerada nas condições A com diferentes soluções ligantes.

#### 4.9.2 Influência do tipo de ligante nas propriedades do produto aglomerado

O tipo de ligante utilizado não influenciou no tempo de instantaneização e capacidade de dispersão da goma arábica aglomerada. Os aglomerados com os dois ligantes apresentaram considerável redução no tempo de umedecimento e imersão em água quando

comparados a matéria-prima. A capacidade de dispersão em água sob agitação também foi melhorada para os dois ligantes utilizados. Esse resultado indica que o ligante utilizado e a variação no  $D_{50v}$  final dos aglomerados observada não interferiram nessas características do produto e que tanto soluções de goma arábica quanto soluções de inulina podem ser utilizadas.

Com relação às propriedades de fluidez, para ambos ligantes, melhores resultados foram encontrados para as condições de aglomeração mais secas. Contudo, foi possível alterar o nível de fluidez do aglomerado em maior número de ensaios quando utilizada solução de goma arábica.

A estabilidade da emulsão formada foi aprimorada para a aglomeração com solução de arábica nas condições ótimas, mas foi reduzida para a aglomeração com solução de inulina nas condições ótimas. Esses resultados indicam que o processo de aglomeração não é prejudicial à capacidade de estabilização de emulsão apresentada pela goma arábica. A redução da estabilidade com o uso de soluções de inulina pode estar relacionada ao fato de que a inulina não apresenta capacidade emulsificante igual a goma arábica.

## 5 CONCLUSÕES

A aglomeração de goma arábica mostrou-se possível tanto para soluções de goma arábica, quanto para soluções de inulina. Os aglomerados obtidos apresentaram maior tamanho final de partícula, umidade aceitável e melhores propriedades de escoamento e instantaneização quando comparados à matéria-prima. A aglomeração utilizando soluções de inulina produziu aglomerados com associação entre inulina e goma arábica, o que é promissor para o aprimoramento das propriedades prebióticas deste material.

A técnica de velocimetria de filtro espacial utilizada foi útil para a construção das cinéticas de crescimento dos grânulos e para o melhor entendimento do efeito dos parâmetros do processo nas características do produto. Por meio da evolução das frações de diferentes tamanhos foi possível estabelecer uma relação entre as condições aplicadas e os fenômenos predominantes na aglomeração.

A vazão de ligante foi o parâmetro de processo de maior efeito, uma vez que afetou significativamente o tamanho final das partículas e o rendimento do processo para os dois ligantes utilizados. A concentração do ligante afetou de maneira significativa apenas a aglomeração com goma arábica. Por meio dos resultados obtidos foi possível observar que o aumento da viscosidade da solução favorece a união entre as partículas favorecendo a aglomeração. O tamanho final das partículas e a cinética de crescimento do grânulo analisados em conjunto permitem concluir que o benefício do aumento da viscosidade exprime-se principalmente quando os grânulos já tiveram um crescimento inicial, ou seja, quando é necessária maior força de adesão entre as partículas.

Condições ótimas de processo para os dois ligantes foram estabelecidas e os produtos aglomerados apresentaram melhores propriedades do que a matéria-prima. Foi observado redução no tempo de umedecimento e instantaneização e redução no  $I_{Carr}$ , o que indica melhores propriedades de fluidez. A capacidade de estabilização para o aglomerado com solução de goma arábica também apresentou melhor resultado do que a apresentada pela matéria-prima.

Por meio desse estudo é possível estabelecer uma relação entre as características da solução ligante e as propriedades do produto aglomerado. As soluções com tensão residual e maior viscosidade, soluções de goma arábica, proporcionaram melhora mais expressiva nas propriedades do aglomerado como tamanho e fluidez. Entretanto, os produtos aglomerados com

soluções de inulina também apresentaram aumento no tamanho de partícula, melhoria nas propriedades de fluidez e capacidade de instantaneização semelhante aos aglomerados com soluções de goma arábica. Assim sendo, é possível concluir que a inulina pode ser utilizada com ligante em processos de aglomeração com a vantagem de acrescentar propriedades prebióticas ao produto.

## 6 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

- Aprofundar o estudo da relação entre as características reológicas das soluções e a força das pontes líquidas e sólidas formadas no aglomerado determinando, por exemplo, a resistência e quebra destes grânulos durante o manuseio após o processo de aglomeração.
- Estudar a temperatura de transição vítrea da goma arábica e sua relação com a temperatura e atividade de água de modo que seja possível estabelecer a temperatura de pegajosidade do material durante o processo de aglomeração.
- Analisar, por meio de testes microbiológicos, o efeito prebiótico da inserção de inulina na goma arábica e estabelecer uma relação entre a quantidade de inulina inserida e o efeito prebiótico alcançado.
- Estudar o comportamento da goma arábica aglomerada com inulina em formulações reais de alimentos e bebidas e estabelecer se a presença de inulina irá provocar alterações como, por exemplo, alteração significativa na estabilidade de emulsões e alterações organolépticas nesses produtos.

## 7 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AL-ASSAF, S. et al. Characterization and properties of Acacia senegal (L.) Willd. var. senegal with enhanced properties (Acacia (sen) SUPER GUM (TM)): Part 1 - Controlled maturation of Acacia senegal var. senegal to increase viscoelasticity, produce a hydrogel form and convert a poor into a good emulsifier. **Food Hydrocolloids**, v. 21, n. 3, p. 319-328, 2007.

AL-ASSAF, S.; PHILLIPS, G.; WILLIAMS, P. Studies on acacia exudate gums. Part I: the molecular weight of Acacia senegal gum exudate. **Food Hydrocolloids**, v. 19, n. 4, p. 647-660, 2005a.

\_\_\_\_\_. Studies on Acacia exudate gums: part II. Molecular weight comparison of the Vulgares and Gummiferae series of Acacia gums. **Food Hydrocolloids**, v. 19, n. 4, p. 661-667, 2005b.

ALSHIHABI, F.; VANDAMME, T.; BETZ, G. Focused beam reflectance method as an innovative (PAT) tool to monitor in-line granulation process in fluidized bed. **Pharmaceutical Development and Technology**, v. 18, n. 1, p. 73-84, 2013.

ANDREOLA, K. **Agglomeração de proteína concentrada de arroz em leite fluidizado: monitoramento *in-line* do tamanho das partículas**. 2017. 281 p. (Doutorado). Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

ANDREOLA, K.; SILVA, C.; TARANTO, O. Agglomeration process of rice protein concentrate using glucomannan as binder: In-line monitoring of particle size. **Chemical Engineering Research & Design**, v. 135, p. 37-51, 2018.

ANVISA. AGÊNCIA NACIONAL DE VIGILÂNCIA SANITÁRIA - ANVISA. **Resolução RDC ANVISA/MS nº 45, de Dispõe sobre aditivos alimentares autorizados para uso segundo as Boas Práticas de Fabricação (BPF)**. Brasília, DF 2010.

\_\_\_\_\_. Portal Anvisa, AGÊNCIA NACIONAL DE VIGILÂNCIA SANITÁRIA - ANVISA. <<http://portal.anvisa.gov.br/novos-ingredientes-aprovados>>, 2016. Acesso em: 20 de junho 2016.

AOAC. Association of Official Analytical Chemists. **Official methods of analysis of AOAC International**. (16 ed.). Washington, 1995.

APOLINARIO, A. et al. Inulin-type fructans: A review on different aspects of biochemical and pharmaceutical technology. **Carbohydrate Polymers**, v. 101, p. 368-378, 2014.

- BARAY, S. Acacia Gum. In: SAMUEL, S. S. C. E. P. (Ed.). **Fiber Ingredients - Food Applications and Health Benefits**. Londres: CRC Press, 2009. cap. 7, p.121-134.
- BARBOSA CANOVAS, G. V.; MALAVE-LOPEZ, J.; PELEG, M. Density and compressibility of selected food powders mixtures. **Journal of Food Process Engineering**, v. 10, p. 19, 1987.
- BARBOSA CANOVAS, G. V. et al. Particle Properties. In: (Ed.). **FOOD POWDERS: Physical Properties, Processing, and Functionality** New York: Kluwer Academic/Plenum Publishers, 2005. cap. 2, p.36.
- BEATTY, S.; SMITH, J. Fractional wettability and contact angle dynamics in burned water repellent soils. **Journal of Hydrology**, v. 391, n. 1-2, p. 99-110, 2010.
- BOT, A. et al. Influence of crystallisation conditions on the large deformation rheology of inulin gels. **Food Hydrocolloids**, v. 18, n. 4, p. 547-556, 2004.
- BOTREL, D. et al. Influence of wall matrix systems on the properties of spray-dried microparticles containing fish oil. **Food Research International**, v. 62, p. 344-352, 2014.
- BURGGRAEVE, A. et al. Process analytical tools for monitoring, understanding, and control of pharmaceutical fluidized bed granulation: A review. **European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics**, v. 83, n. 1, p. 2-15, 2013.
- \_\_\_\_\_. Evaluation of in-line spatial filter velocimetry as PAT monitoring tool for particle growth during fluid bed granulation. **European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics**, v. 76, n. 1, p. 138-146, 2010.
- CHARINPANITKUL, T. et al. Granulation and tabletization of pharmaceutical lactose granules prepared by a top-sprayed fluidized bed granulator. **Journal of Industrial and Engineering Chemistry**, v. 14, n. 5, p. 661-666, 2008.
- CHEMAT, F.; ZILL-E-HUMA; KHAN, M. Applications of ultrasound in food technology: Processing, preservation and extraction. **Ultrasonics Sonochemistry**, v. 18, n. 4, p. 813-835, 2011.
- CHERBUT, C. et al. Acacia Gum is a Bifidogenic Dietary Fibre with High Digestive Tolerance in Healthy Humans. **Microbial Ecology in Health and Disease**, v. 15, n. 1, p. 9, 2003.

DACANAL, G.; MENEGALLI, F. Selection of operational parameters for the production of instant soy protein isolate by pulsed fluid bed agglomeration. **Powder Technology**, v. 203, n. 3, p. 565-573, 2010.

DACANAL, G. C. **Estudo da granulação de suco de acerola desidratado em leite fluidizado**. 2005. 136 p. (Mestrado). Departamento de Engenharia de Alimentos, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

\_\_\_\_\_. **Aglomeración de polpa de acerola e proteína isolada de soja em pó em leite fluidizado cônico pulsado** 2009. 202 p. (Doutorado). Departamento de engenharia de alimentos, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

DAGUET, D. et al. Arabinogalactan and fructooligosaccharides improve the gut barrier function in distinct areas of the colon in the Simulator of the Human Intestinal Microbial Ecosystem. **Journal of Functional Foods**, v. 20, p. 369-379, 2016.

DE GENNES, P. G. Wetting: statics and dynamics. **Reviews of Modern physics**, v. 57, n. 3, p. 37, 1985.

DHANALAKSHMI, K.; BHATTACHARYA, S. Compaction agglomeration of corn starch in presence of different binders. **Journal of Food Engineering**, v. 104, n. 3, p. 348-355, 2011.

DI FELICE, R. Hydrodynamics of liquid fluidisation. **Chemical Engineering Science**, v. 50, n. 8, p. 33, 1995.

DIETER, P. et al. In-line particle sizing for real-time process control by fibre-optical spatial filtering technique (SFT). **Advanced Powder Technology**, v. 22, n. 2, p. 203-208, 2011.

DOPFER, D. et al. Adhesion mechanisms between water soluble particles. **Powder Technology**, v. 238, p. 35-49, 2013.

DROR, Y.; COHEN, Y.; YERUSHALMI-ROZEN, R. Structure of gum arabic in aqueous solution. **Journal of Polymer Science Part B-Polymer Physics**, v. 44, n. 22, p. 3265-3271, 2006.

EINHORN-STOLL, U.; KUNZEK, H. The influence of the storage conditions heat and humidity on conformation, state transitions and degradation behaviour of dried pectins. **Food Hydrocolloids**, v. 23, n. 3, p. 856-866, 2009.

ELMANAN, M. et al. Studies on Acacia exudate gums: Part VI. Interfacial rheology of Acacia senegal and Acacia seyal. **Food Hydrocolloids**, v. 22, n. 4, p. 682-689, JUN 2008 2008. ISSN 0268-005X.

ENNIS, B.; TARDOS, G.; PFEFFER, R. A microlevel-based characterization of granulation phenomena. **Powder Technology**, v. 65, n. 1-3, p. 257-272, 1991.

FAO, FOOD AND AGRICULTURE ORGANIZATION OF THE UNITED NATIONS -  
FAO. **Gum Arabic.**

[http://www.fao.org/fileadmin/user\\_upload/jecfa\\_additives/docs/Monograph1/Additive-219.pdf](http://www.fao.org/fileadmin/user_upload/jecfa_additives/docs/Monograph1/Additive-219.pdf), 1999. Acesso em: 01 de abril de 2019.

FERNANDES, R. et al. Cashew gum and inulin: New alternative for ginger essential oil microencapsulation. **Carbohydrate Polymers**, v. 153, p. 133-142, 2016.

FERNANDES, R. V. D. B. **Microencapsulamento de óleo essencial de alecrim (*Rosmarinus officinalis L.*) através de secagem por atomização** 2013. 134 p. (Mestrado). Departamento de Ciência dos Alimentos, Universidade Federal de Lavras, LAVRAS-MG.

FOLTTMANN, F. et al. In-line spatial filtering velocimetry for particle size and film thickness determination in fluidized-bed pellet coating processes. **European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics**, v. 88, n. 3, p. 931-938, 2014.

FRANCK, A. Technological functionality of inulin and oligofructose. **British Journal of Nutrition**, v. 87, p. S287-S291, 2002.

FUCHS, M. et al. Encapsulation of oil in powder using spray drying and fluidised bed agglomeration. **Journal of Food Engineering**, v. 75, n. 1, p. 27-35, 2006.

GELDART, D. Types of gas fluidization. **Powder Technology**, v. 7, n. 5, p. 285-292, 1973.

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

GHARSALLAOUI, A. et al. Applications of spray-drying in microencapsulation of food ingredients: An overview. **Food Research International**, v. 40, n. 9, p. 1107-1121, 2007.

GHOSAL, S.; INDIRA, T.; BHATTACHARYA, S. Agglomeration of a model food powder: Effect of maltodextrin and gum Arabic dispersions on flow behavior and compacted mass. **Journal of Food Engineering**, v. 96, n. 2, p. 222-228, 2010.

GIBSON, G. et al. Selective stimulation of bifidobacteria in the human colon by oligofructose and inulin. **Gastroenterology**, v. 108, n. 4, p. 975-982, 1995.

GOMEZ-DIAZ, D.; NAVAZA, J.; QUINTANS-RIVEIRO, L. Intrinsic Viscosity and Flow Behaviour of Arabic Gum Aqueous Solutions. **International Journal of Food Properties**, v. 11, n. 4, p. 773-780, 2008.

GUAN, Y.; ZHONG, Q. Gum Arabic and Fe<sup>2+</sup> Synergistically Improve the Heat and Acid Stability of Norbixin at pH 3.0-5.0. **Journal of Agricultural and Food Chemistry**, v. 62, n. 52, p. 12668-12677, 2014.

\_\_\_\_\_. The improved thermal stability of anthocyanins at pH 5.0 by gum arabic. **LWT-Food Science and Technology**, v. 64, n. 2, p. 706-712, 2015.

HEINRICH, S. et al. Study of dynamic multi-dimensional temperature and concentration distributions in liquid-sprayed fluidized beds. **Chemical Engineering Science**, v. 58, n. 23-24, p. 5135-5160, 2003.

HEMATI, A. et al. Fluidized bed coating and granulation: influence of process-related variables and physicochemical properties on the growth kinetics. **Powder Technology**, v. 130, n. 1-3, p. 18-34, 2003.

HIRATA, T.; DACANAL, G.; MENEGALLI, F. Effect of operational conditions on the properties of pectin powder agglomerated in pulsed fluid bed. **Powder Technology**, v. 245, p. 174-181, 2013.

HIRATA, T. A. M. **Mecanismos de aglomeração de polissacarídeos em pó em leito fluidizado pulsado**. 2015. 179 p. (Doutorado). Departamento de Engenharia de Alimentos, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

HOGKAMP, S.; SCHUBERT, H. Rehydration of food powders. **Food Science and Technology International**, v. 9, n. 3, p. 223-235, 2003.

HUANG, J. et al. A PAT Approach to Enhance Process Understanding of Fluid Bed Granulation Using In-line Particle Size Characterization and Multivariate Analysis. **Journal of Pharmaceutical Innovation**, v. 5, n. 1-2, p. 58-68, 2010.

IDRIS, O. H. M.; HADDAD, G. M. Gum arabic's (gum acacia's) journey from tree to end uses. In: KENNEDY, J. F.; PHILLIPS, G. O., et al (Ed.). **Gum Arabic**. Cambridge: The Royal Society of Chemistry, 2012. cap. 1, p.3-17.

INSTITUTO ADOLFO LUTZ, I. A. **Métodos físico-químicos para análise de alimentos**. 4ª ed. 1ª edição digital. São Paulo-SP: Instituto Adolfo Lutz: 1020 p. 2008.

ISLAM, A. et al. A review of recent developments on the regulatory, structural and functional aspects of gum arabic. **Food Hydrocolloids**, v. 11, n. 4, p. 493-505, 1997.

IVESON, S. et al. Nucleation, growth and breakage phenomena in agitated wet granulation processes: a review. **Powder Technology**, v. 117, n. 1-2, p. 3-39, 2001.

JIMENEZ, T.; TURCHIULI, C.; DUMOULIN, E. Particles agglomeration in a conical fluidized bed in relation with air temperature profiles. **Chemical Engineering Science**, v. 61, n. 18, p. 5954-5961, 2006.

JINAPONG, N.; SUPHANTHARIKA, M.; JAMNONG, P. Production of instant soymilk powders by ultrafiltration, spray drying and fluidized bed agglomeration. **Journal of Food Engineering**, v. 84, n. 2, p. 194-205, 2008.

KAEWKLUM, R.; KUPRIANOV, V. Theoretical and experimental study on hydrodynamic characteristics of fluidization in air-sand conical beds. **Chemical Engineering Science**, v. 63, n. 6, p. 1471-1479, 2008.

KANAKDANDE, D.; BHOSALE, R.; SINGHAL, R. Stability of cumin oleoresin microencapsulated in different combination of gum arabic, maltodextrin and modified starch. **Carbohydrate Polymers**, v. 67, n. 4, p. 536-541, 2007.

KARIMI, R. et al. Application of inulin in cheese as prebiotic, fat replacer and texturizer: A review. **Carbohydrate Polymers**, v. 119, p. 85-100, 2015.

KIM, Y.; FAQIH, M.; WANG, S. Factors affecting gel formation of inulin. **Carbohydrate Polymers**, v. 46, n. 2, p. 135-145, 2001.

KOMATSU, T. et al. Nutrition claims for functional guava mousses produced with milk fat substitution by inulin and/or whey protein concentrate based on heterogeneous food legislations. **Lwt-Food Science and Technology**, v. 50, n. 2, p. 755-765, 2013.

KRISHNAN, S.; BHOSALE, R.; SINGHAL, R. Microencapsulation of cardamom oleoresin: Evaluation of blends of gum arabic, maltodextrin and a modified starch as wall materials. **Carbohydrate Polymers**, v. 61, n. 1, p. 95-102, 2005.

KUNII, D.; LEVENSPIEL, O. **Fluidization Engineering**. 2. New York: John Wiley, 1991. 491 ISBN 978-0-08-050664-7.

LEITE, J. T. D. C. **Ontenção de extrato de inulina de chicória ( Cichorium Intybus) por abaixamento de temperatura e secagem em spray dryer**. 2001. 155 p. Liu(Mestrado). Faculdade de Engenharia Agrícola, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

LI, X. et al. Rheological study of gum arabic solutions: Interpretation based on molecular self-association. **Food Hydrocolloids**, v. 23, n. 8, p. 2394-2402, 2009.

LI, Y. et al. Effects of cross-linked inulin with different polymerisation degrees on physicochemical and sensory properties of set-style yoghurt. **International Dairy Journal**, v. 94, p. 46-52, 2019.

LIPSANEN, T. et al. Particle Size, Moisture, and Fluidization Variations Described by Indirect In-line Physical Measurements of Fluid Bed Granulation. **Aaps Pharmscitech**, v. 9, n. 4, p. 1070-1077, 2008.

LIU, L. et al. Coalescence of deformable granules in wet granulation processes. **Aiche Journal**, v. 46, n. 3, p. 529-539, 2000.

LOO, J. V. et al. On the presence of inulin and oligofructose as natural ingredients in the western diet. **Critical reviews in food science and nutrition**, v. 35, n. 6, p. 27, 1995.

MAEGAVA, L. M. **Escoamento de soluções poliméricas: a redução do arraste**. 1986. 263 p. (Mestrado). Faculdade de engenharia química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

MARKOWSKI, A.; KAMINSKI, W. Hydrodynamic characteristics of jet-spouted beds. **Canadian Journal of Chemical Engineering**, v. 61, n. 3, p. 377-381, 1983.

- MARZORATI, M. et al. Addition of acacia gum to a FOS/inulin blend improves its fermentation profile in the Simulator of the Human Intestinal Microbial Ecosystem (SHIME (R)). **Journal of Functional Foods**, v. 16, p. 211-222, 2015.
- MCCLEMENTS, D. J. Critical Review of Techniques and Methodologies for Characterization of Emulsion Stability **Critical Reviews in Food Science and Nutrition** v. 47, n. 7, p. 611-649, 2007.
- MEYER, D. et al. Inulin as texture modifier in dairy products. **Food Hydrocolloids**, v. 25, n. 8, p. 1881-1890, 2011.
- MEYER, D.; BLAAUWHOED, J.-P. Inulin. In: WILLIAMS, P. A. e PHILLIPS, G. O. (Ed.). **Handbook of hydrocolloids**. 2ª. Nova Iorque: CRC Press 2009. cap. 30, p.829 - 848.
- MORT, P. Scale-up of binder agglomeration processes. **Powder Technology**, v. 150, n. 2, p. 86-103, 2005.
- MOTHE, C.; RAO, M. Rheological behavior of aqueous dispersions of cashew gum and gum arabic: effect of concentration and blending. **Food Hydrocolloids**, v. 13, n. 6, p. 501-506, 1999.
- NÄRVÄNEN, T. et al. Gaining Fluid Bed Process Understanding by In-Line Particle Size Analysis. **Journal of Pharmaceutical Sciences**, v. 98, n. 3, p. 1110-1117, 2009.
- NASCIMENTO, R. F. **Estudo do processo de aglomeração de proteína isolada de ervilha em leite fluidizado pulsado**. 2017. 98 p. (Mestrado). Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.
- NEXIRA. Nexira Food, Ficha Técnica: SpraygumBB. França, 2015.
- NIEUWMEYER, F. et al. Granule characterization during fluid bed drying by development of a near infrared method to determine water content and median granule size. **Pharmaceutical Research**, v. 24, n. 10, p. 1854-1861, 2007.
- NUSSINOVITCH, A. Exudate gums. In: (Ed.). **Hydrocolloid Applications: Gum technology in the food and other industries**. Londres: Chapman and Hall, 1997. cap. 7, p.125-139.
- O'BRIEN, C. et al. Evaluation of the effects of fat replacers on the quality of wheat bread. **Journal of Food Engineering**, v. 56, n. 2-3, p. 265-267, 2003.

- PALLAS, N.; PETHICA, B. THE SURFACE-TENSION OF WATER. **Colloids and Surfaces**, v. 6, n. 3, p. 221-227, 1983.
- PATEL, S.; GOYAL, A. Applications of Natural Polymer Gum Arabic: A Review. **International Journal of Food Properties**, v. 18, n. 5, p. 986-998, 2015.
- PENG, Y.; FAN, L. Hydrodynamic characteristics of fluidization in liquid-solid tapered beds. **Chemical Engineering Science**, v. 52, n. 14, p. 2277-2290, 1997.
- PHILLIPS, A.; PHILLIPS, G. Biofunctional behaviour and health benefits of a specific gum arabic. **Food Hydrocolloids**, v. 25, n. 2, p. 165-169, 2011.
- PIETSCH, W. **Agglomeration Processes: Phenomena, Technologies, Equipment** Weinheim: Wiley-VCH, 2002. 614.
- RANDALL, R.; PHILLIPS, G.; WILLIAMS, P. Fractionation and characterization of gum from *Acacia senegal*. **Food Hydrocolloids**, v. 3, n. 1, p. 65-75, 1989.
- RAYO, L. et al. Production of instant green banana flour (*Musa cavendishii*, var. Nanicao) by a pulsed-fluidized bed agglomeration. **LWT-Food Science and Technology**, v. 63, n. 1, p. 461-469, 2015.
- SANCHEZ, C. et al. Structure and rheological properties of acacia gum dispersions. **Food Hydrocolloids**, v. 16, n. 3, p. 257-267, 2002.
- SAU, D.; MOHANTY, S.; BISWAL, K. Minimum fluidization velocities and maximum bed pressure drops for gas-solid tapered fluidized beds. **Chemical Engineering Journal**, v. 132, n. 1-3, p. 151-157, 2007.
- SCHAAFSMA, S.; MARX, T.; HOFFMANN, A. Investigation of the particle flowpattern and segregation in tapered fluidized bed granulators. **Chemical Engineering Science**, v. 61, n. 14, p. 4467-4475, 2006.
- SCHUBERT, H. Food Particle Technology. Part I: Properties of Particles and Particulate Food Systems. **Journal of Food Engineering**, v. 6, p. 32, 1987.
- SENSUS. Sensus, Ficha Técnica:Frutafit® IQ, versão 21015.01, agosto de 2015. Holanda, 2015.

- SHOAIB, M. et al. Inulin: Properties, health benefits and food applications. **Carbohydrate Polymers**, v. 147, p. 444-454, 2016.
- SILVA, C. A. M. D. **Aplicação de tecnologias analíticas de processo e inteligência artificial para monitoramento e controle de processos de recobrimento de partículas em leito fluidizado**. 2015. 325 p. (Doutorado). Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.
- SILVA, C. A. M. D.; TARANTO, O. P. Real-time monitoring of gas–solid fluidized-bed granulation and coating process: evolution of particle size, fluidization regime transitions, and psychometric parameters **Drying Technology**, v. 33, p. 20, 2015.
- SILVA, R. Use of inulin as a natural texture modifier. **Cereal Foods World**, v. 41, n. 10, p. 792-794, 1996.
- SISKO, A. The flow of lubricating greases. **Industrial and Engineering Chemistry**, v. 50, n. 12, p. 1789-1792, 1958.
- SMITH, P. G. **Applications of Fluidization to Food Processing**. Oxford, UK: Blackwell Science: 258 p. 2007.
- TAN, H.; SALMAN, A.; HOUNSLOW, M. Kinetics of fluidised bed melt granulation I: The effect of process variables. **Chemical Engineering Science**, v. 61, n. 5, p. 1585-1601, 2006.
- TARDOS, G.; KHAN, M.; MORT, P. Critical parameters and limiting conditions in binder granulation of fine powders. **Powder Technology**, v. 94, n. 3, p. 245-258, 1997.
- TARDOS, G. I.; MORT, P. R. Applications for Coating and Granulation. In: YANG, W.-C. (Ed.). **Handbook of Fluidization and Fluid-Particle Systems**. New York Marcel Dekker, 2003. cap. 17, p.24.
- TEUNOU, E.; FITZPATRICK, J.; SYNNOTT, E. Characterisation of food powder flowability. **Journal of Food Engineering**, v. 39, n. 1, p. 31-37, 1999.
- TOK, A. et al. Monitoring Granulation Rate Processes Using Three PAT Tools in a Pilot-Scale Fluidized Bed. **Aaps Pharmscitech**, v. 9, n. 4, p. 1083-1091, 2008.

TONELI, J. T. D. C. L. **Processos de separação física e secagem de inulina obtida a partir de raízes de chicória (*Cichorium Intybus L.*)** 2006. 208 p. (Doutorado). Faculdade de Engenharia de Alimentos, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP.

TURCHIULI, C. et al. Fluidised bed agglomeration: Agglomerates shape and end-use properties. **Powder Technology**, v. 157, n. 1-3, p. 168-175, 2005.

TURCHIULI, C.; SMAIL, R.; DUMOULIN, E. Fluidized bed agglomeration of skim milk powder: Analysis of sampling for the follow-up of agglomerate growth. **Powder Technology**, v. 238, p. 161-168, 2013.

VAIDYA, S.; BHOSALE, R.; SINGHAL, R. Microencapsulation of cinnamon oleoresin by spray drying using different wall materials. **Drying Technology**, v. 24, n. 8, p. 983-992, 2006.

VENGATESON, U.; MOHAN, R. Experimental and modeling study of fluidized bed granulation: Effect of binder flow rate and fluidizing air velocity. **Resource-Efficient Technologies**, v. 2, p. 12, 2016.

VIEBKE, C.; AL-ASSAF, S.; PHILLIPS, G. O. Food hydrocolloids and health claims. **Bioactive Carbohydrates and Dietary Fibre**, v. 4, n. 2, p. 14, 2014.

WHISTLER, R. L. Exudate gums. In: ROY L. WHISTLER, J. N. B. (Ed.). **Industrial gums: polysaccharides and their derivatives**. 3ª. Londres: Academic Press, 1993. cap. 12, p.309 - 339.

WIEGEL, D. et al. In-line particle size measurement and agglomeration detection of pellet fluidized bed coating by Spatial Filter Velocimetry. **Powder Technology**, v. 301, p. 261-267, 2016.

WILLIAMS, P. A.; PHILLIPS, G. O. Gums Properties of Individual Gums. In: TOLDRA, B. C. P. F. F. (Ed.). **Encyclopedia of Food Sciences and Nutrition**. 2ª. Reino Unido: Academic Press, 2003. p.2992-3001.

\_\_\_\_\_. Introduction to food hydrocolloids. In: WILLIAMS, P. A. e PHILLIPS, G. O. (Ed.). **Handbook of hydrocolloids**. 2ª. Nova Iorque: CRC Press 2009. cap. 1, p.1-22.

ZHAO, Z. et al. Hydrodynamic characterization of a tapered gas-solid bed without a gas distributor. **Powder Technology**, v. 256, p. 300-309, 2014.

ZIMERI, J.; KOKINI, J. Rheological properties of inulin-waxy maize starch systems. **Carbohydrate Polymers**, v. 52, n. 1, p. 67-85, 2003.

**APÊNDICE A**      **Comparação entre as curvas de distribuição de tamanho cumulativas obtidas por difração a laser e pela sonda Parsum para diferentes *ring buffer***

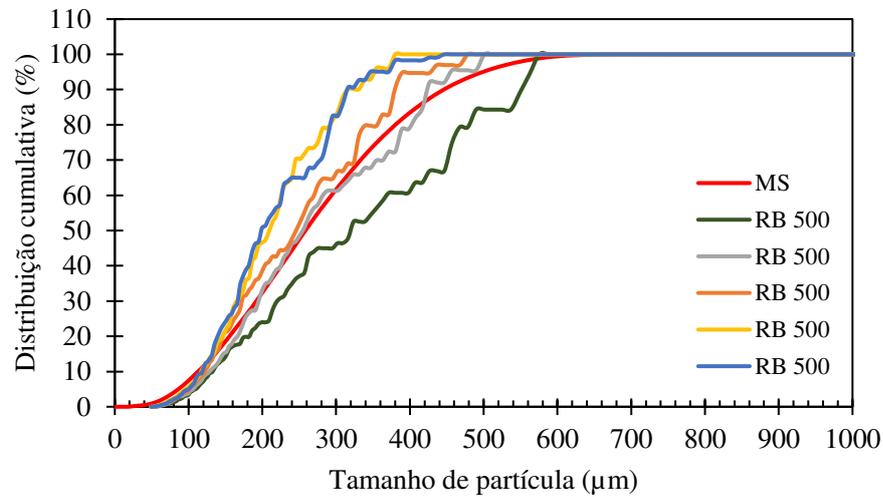


Figura A.1: Curva de distribuição cumulativas para *ring buffer* de 500 após 15 minutos de processo (P1).

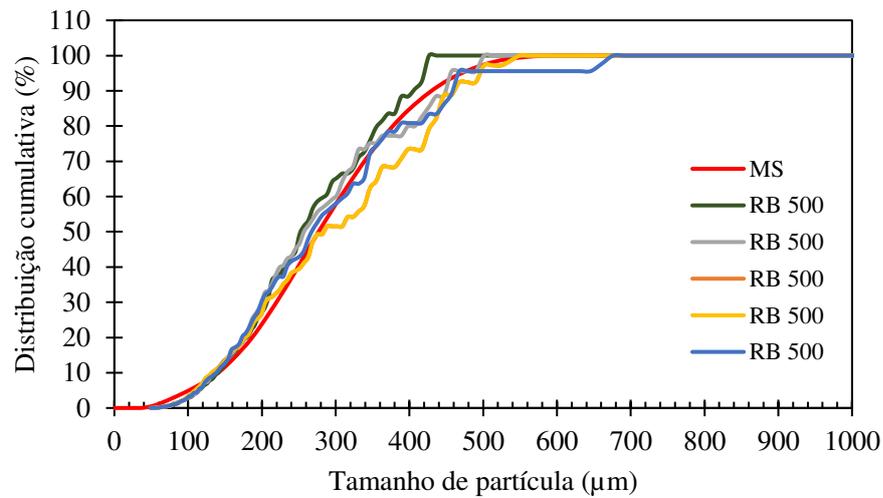


Figura A.2: Curvas de distribuição cumulativas para *ring buffer* de 500 após 30 minutos de processo (P2).

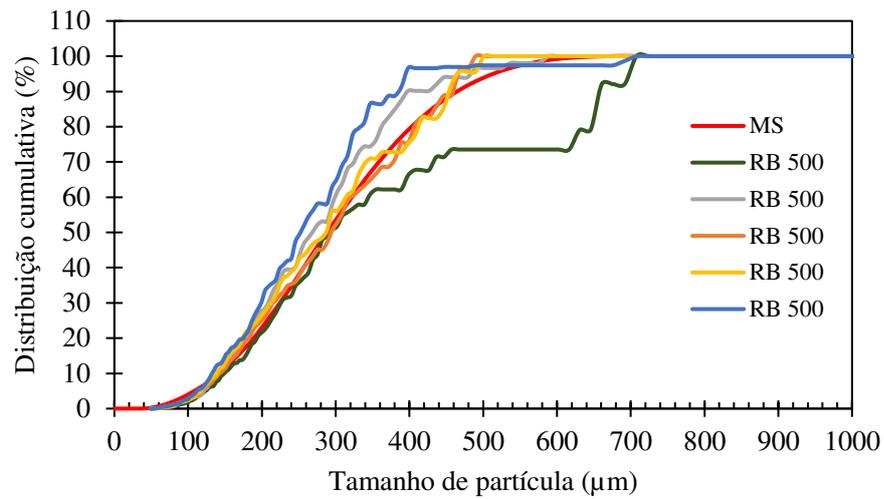


Figura A.3: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 500 ao final do processo (P3).

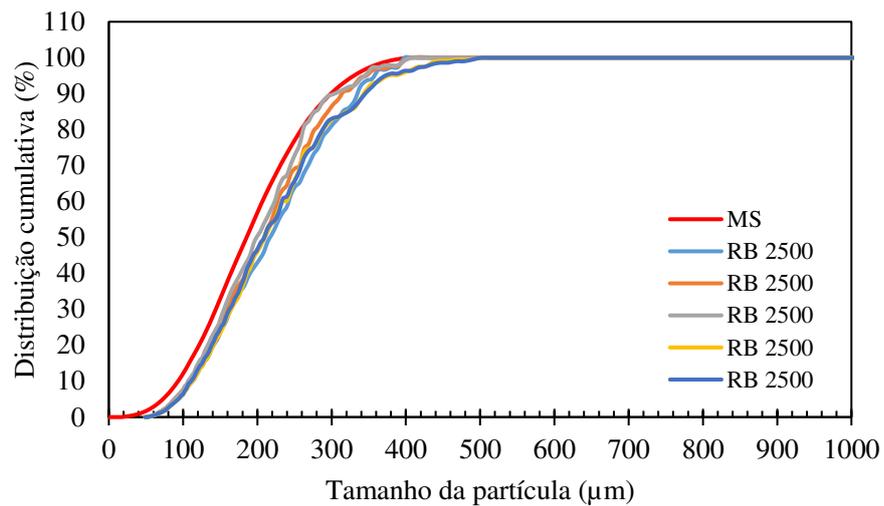


Figura A.4: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 2500 após 15 minutos de processo (P1).

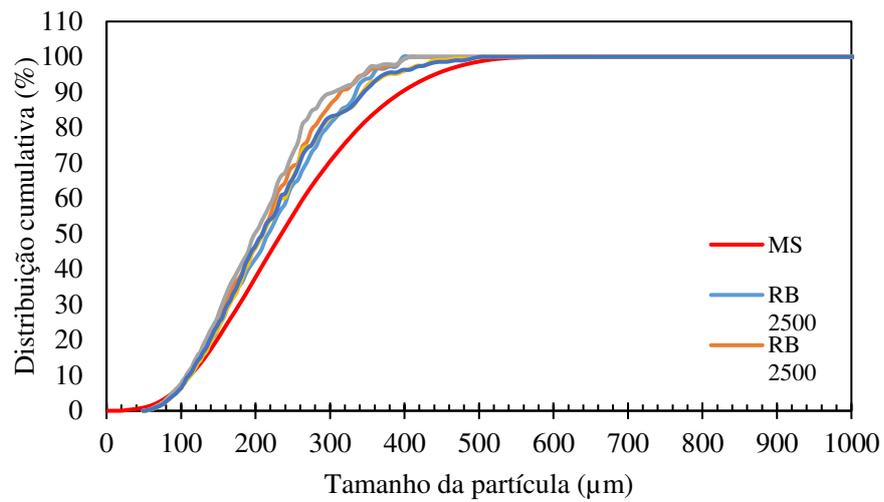


Figura A.5: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 2500 após 30 minutos de processo (P2).

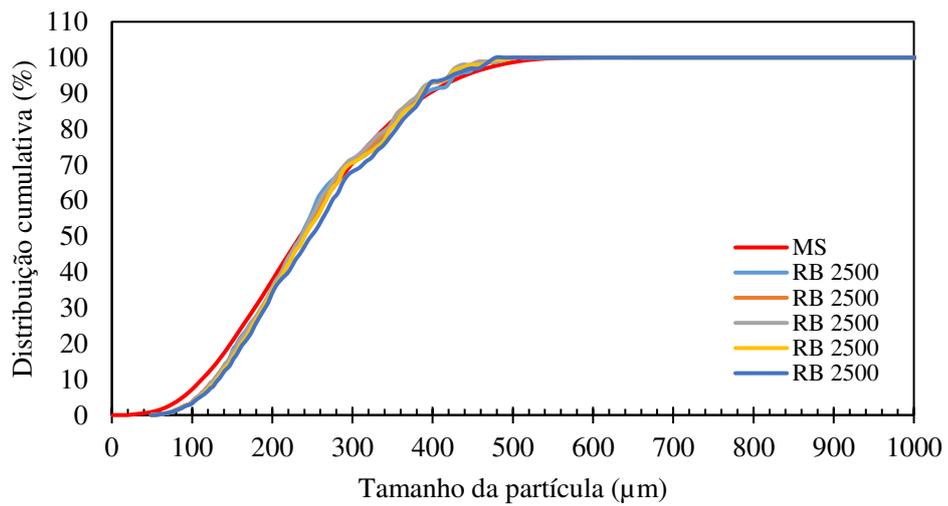


Figura A.6: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 2500 ao final do processo (P3).

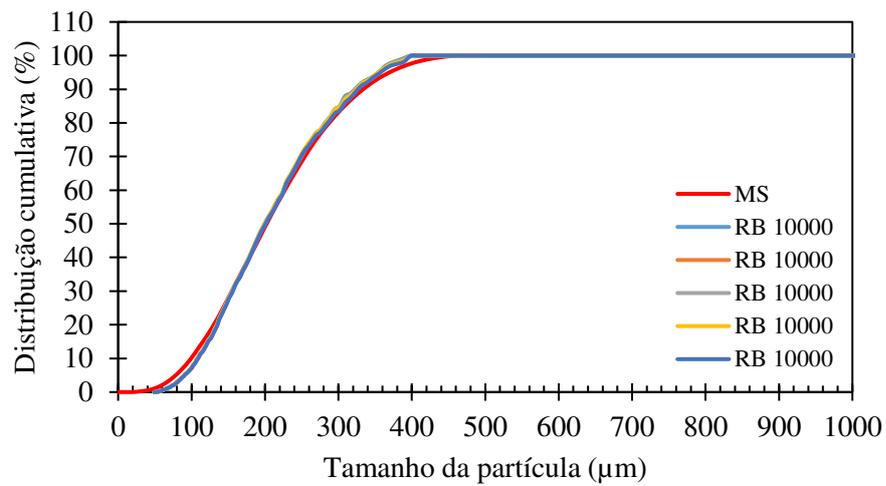


Figura A.7: Curvas de distribuição cumulativas para *ring buffer* de 10000 após 15 minutos de processo (P1).

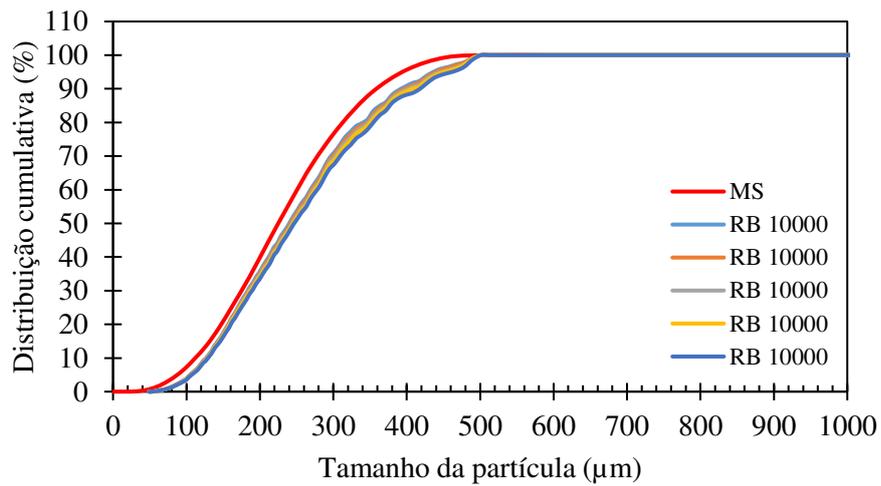


Figura A.8: Distribuição cumulativas para ring buffer de 10000 após 30 minutos de processo (P2).

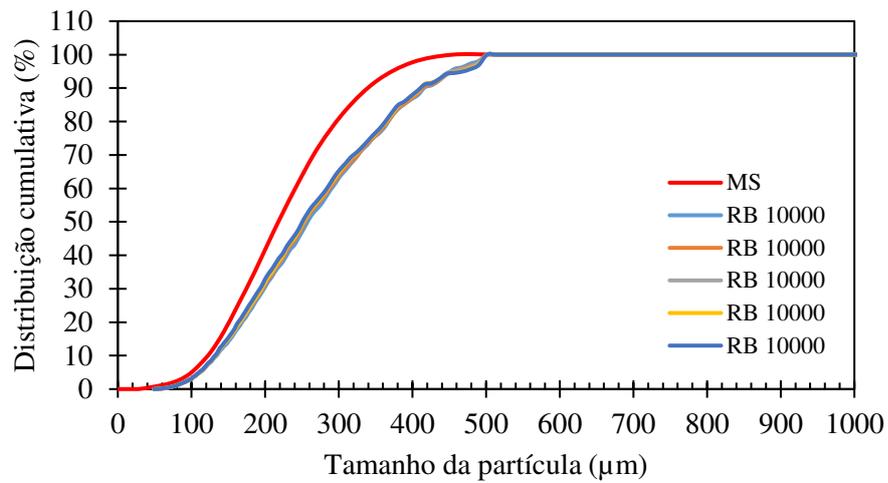


Figura A.9: Distribuição cumulativas para ring buffer de 10000 ao final do processo (P3).

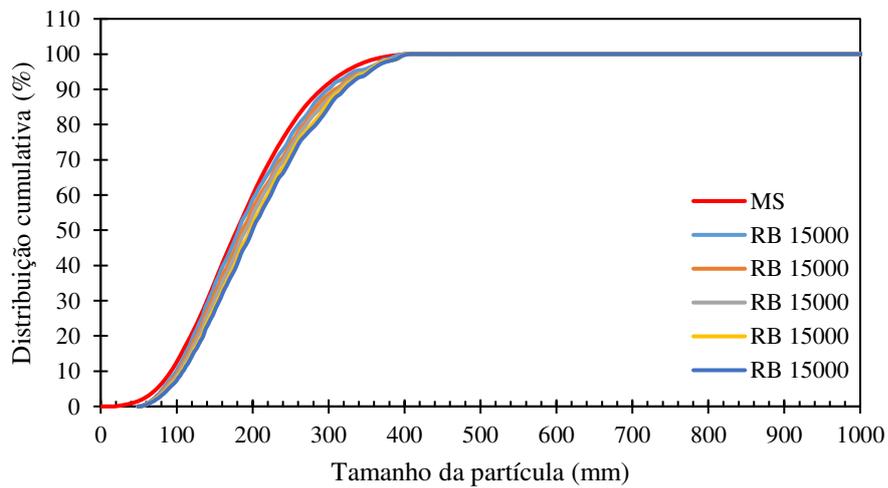


Figura A.10: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 15000 após 15 minutos de processo (P1).

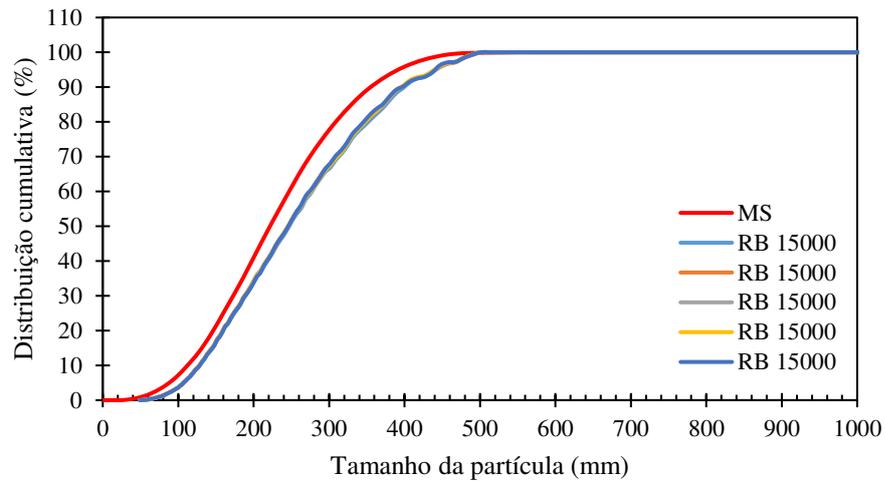


Figura A.11: Distribuição cumulativas para ring buffer de 15000 após 30 minutos de processo (P2).

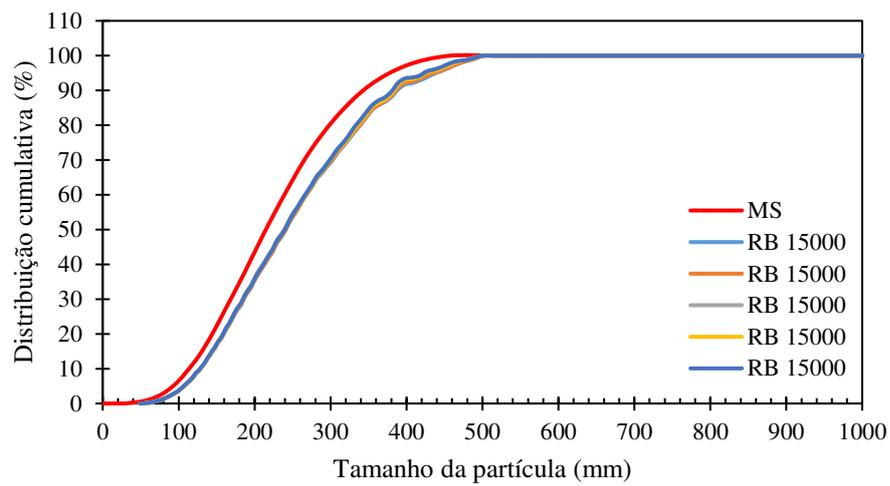


Figura A.12: Curvas de distribuição cumulativas para ring buffer de 15000 ao final do processo (P3).