



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

**ÁREA DE CONCENTRAÇÃO
ENGENHARIA DE PROCESSOS**

**CARACTERIZAÇÃO FLUIDODINÂMICA NO
RECOBRIMENTO DE CELULOSE MICROCRISTALINA
EM LEITO FLUIDIZADO**

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

Autor : **ROBERTO LUIS GOMES DA CUNHA**

Orientadora: **Profa. Dra. Sandra Cristina dos Santos Rocha**

Campinas - São Paulo
Dezembro de 2004

200511493

UNIDADE	BC
Nº CHAMADA	7/Unicamp C914c
V	EX
TOMBO BC/	64297
PROC.	16-P-00086-35
C	<input type="checkbox"/>
D	<input checked="" type="checkbox"/>
PREÇO	11,00
DATA	13/06/05
Nº CPD	

Bibid: 35 3058

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

C914c Cunha, Roberto Luis Gomes da
Caracterização fluidodinâmica no recobrimento de
celulose microcristalina em leito fluidizado / Roberto Luis
Gomes da Cunha.--Campinas, SP: [s.n.], 2004.

Orientador: Sandra Cristina dos Santos Rocha
Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de
Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

1. Revestimentos. 2. Leito fluidizado. 3. Fluidização.
Celulose. I. Rocha, Sandra Cristina dos Santos. II.
Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de
Engenharia Química. III. Título.

Título em Inglês: Fluid dynamic characterization of the microcrystalline
cellulose coating in a fluidized bed

Palavras-chave em Inglês: Coating, Fluidized bed, Fluidization e Cellulose

Área de concentração: Engenharia de Processos

Titulação: Mestre em Engenharia Química

Banca examinadora: Osvaldir Pereira Taranto e Virginia Aparecida da Silva
Moris

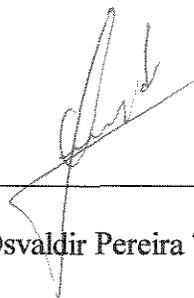
Data da defesa: 13/12/2004

Dissertação de Mestrado defendida por **Roberto Luis Gomes da Cunha** e aprovada em 13 de dezembro de 2004 pela banca examinadora constituída pelos doutores:



Profa. Dra. Sandra Cristina dos Santos Rocha

(FEQ/UNICAMP) – Orientadora



Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto

(FEQ/UNICAMP)



Dra. Virginia Aparecida da Silva Moris

(RHODIA)

UNICAMP
BIBLIOTECA CENTRAL
SEÇÃO CIRCULANTE

Este exemplar corresponde à versão final da Dissertação de Mestrado em Engenharia Química defendida por **Roberto Luis Gomes da Cunha** e aprovada pela Comissão Julgadora em 13 de dezembro de 2004.



Profa. Dra. Sandra Cristina dos Santos Rocha

(Orientadora)

Dedico este trabalho

Aos meus pais, José Manoel e Noêmia pelo amor, dedicação e carinho que me deram, e aos meus irmãos e sobrinhos por terem me apoiado e ajudado todos esses anos de estudos.

"A Esperança do Amanhã está na
Qualidade de Vida de Hoje"

(Lígia M^a da Cunha)

AGRADECIMENTOS

A Deus pelo dom da vida e por ter me proporcionado essa oportunidade de estar aqui nessa jornada.

À Professora Dra. Sandra Cristina dos Santos Rocha, minha orientadora, pela competência, dedicação, apoio, compreensão e por ter acreditado em mim, a minha eterna gratidão e por proporcionar um ambiente de trabalho e de boa convivência no laboratório – LFS.

Aos meus pais, José Manoel e Noêmia, pelo apoio incondicional. Obrigado pelo amor, pela educação que me ofereceu e pelo carinho que me deram em todos os momentos da minha vida. Aos meus irmãos Lígia, Tone, Rose Meyre, Tânia, Cau, Artur, Zé e Márcia pelo companheirismo e amor apoiando mesmo estando distantes para que esses estudos tornassem realidade.

A Tatyana minha noiva pelo carinho, amor, apoio, e compreensão nos dias mais difíceis, mesmo estando distante, mas com o pensamento perto.

Aos meus colegas e amigos nessa caminhada Osvaldo pela amizade e ajuda com seus conhecimentos e troca de idéias e momentos de muitas risadas, Marta, Melissa, Mário.

Aos bolsistas de Iniciação Científica pelos momentos de descontração além da ajuda é claro cada um do seu modo.

À Marta Donida, pelo companheirismo e sempre disposta a ajudar.

À Melissa pela ajuda e companheirismo.

À CAPES, pelo apoio financeiro.

A todos que estiveram ao meu lado de uma forma ou de outra colaboraram para que este trabalho fosse concluído.

SUMÁRIO

RESUMO	iii
ABSTRACT	iv
ÍNDICE DE FIGURAS	v
ÍNDICE DE QUADROS E TABELAS	ix
NOMENCLATURA	xi
CAPÍTULO 1 – INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO 2 – REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	5
2.1 – Fundamentos de fluidização	5
2.1.1 – Introdução	5
2.1.2 – Características das partículas	5
2.1.3 – Regimes de fluidização	7
2.1.4 – Modelos para os parâmetros de fluidização	9
2.2 – Distribuição de gás para leito fluidizado	11
2.2.1 – Escolha do tipo de distribuidor	12
2.3 – Recobrimento e secagem em leito fluidizado	13
2.4 – Recobrimento de partículas em leito fluidizado	14
2.5 – Tecnologia de aglomeração	26
2.5.1 – Mecanismo de formação e crescimento de grânulos	28
2.5.1.2 – Aglomeração e forças interpartículas em leitos fluidodinamicamente ativos	31
CAPÍTULO 3 – MATERIAIS E MÉTODOS	49
3.1- Material a ser utilizado	49
3.1.1 – Suspensão de recobrimento	50
3.2 – Equipamento experimental	51
3.2.1 – Sistema de atomização	54
3.2.2 – Especificação da linha de ar de fluidização	55

3.2.3 – Equipamentos periféricos e instrumentos	55
3.3 – Metodologia	56
3.3.1 – Caracterização das partículas	56
3.3.2 – Aferição da placa de orifício	57
3.3.3 – Estudo da fluidodinâmica a seco	58
3.3.4 – Estudo fluidodinâmico com atomização	59
3.3.5 – Estudo da fluidodinâmica com recobrimento	59
3.3.6 – Vazão máxima de suspensão e grau de saturação do leito	60
3.4 – Planejamento experimental	62
3.5 – Procedimento experimental	63
3.5.1 – recobrimento de partículas	63
CAPÍTULO 4 – RESULTADOS E DISCUSSÃO	65
4.1 - Caracterização das partículas de MICROCEL	65
4.2 - Estudo da fluidodinâmica a seco	66
4.2.1 - Fluidodinâmica do leito	66
4.2.2 – Estudo fluidodinâmico com atomização	69
4.3 – Estudo da fluidodinâmica com recobrimento	70
4.3.1 – Acompanhamento da umidade das partículas de celulose microcristalina	77
4.4 – Resultado do planejamento fatorial completo 3 ²	81
4.4.1 - Análise estatística para as respostas do planejamento	85
4.5 – Análise via microscópio óptico	92
CAPÍTULO 5 – CONCLUSÕES E SUGESTÕES	95
5.1 – Conclusões	95
5.2 – Sugestões para trabalhos futuros	97
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	99
ANEXO A	105

RESUMO

O recobrimento de materiais granulares é uma operação bastante utilizada pela indústria Farmacêutica com diversas finalidades, que vão desde fatores estéticos ao controle da taxa de dissolução de substâncias químicas e incluem: facilitar a administração através da obtenção de uma superfície lisa, identificar o medicamento pelo emprego de cores, proteger a droga de agentes atmosféricos como, luz, oxigênio, entre outros. Neste trabalho estudou-se a fluidodinâmica e o recobrimento da celulose microcristalina – MICROCEL, que é o principal excipiente usado na indústria farmacêutica, com uma suspensão aquosa a base de Eudragit[®], em um leito fluidizado. A atomização contínua da suspensão polimérica é feita através de um bico atomizador de duplo fluido localizado no topo do leito. O objetivo deste trabalho é analisar a fluidodinâmica do leito fluidizado durante o recobrimento, utilizando um sólido pertencente ao grupo B de Geldart, visando a identificação da saturação (instabilidade do regime e/ou colapso da fluidização) do leito relacionando-a com as condições operacionais. As variáveis operacionais analisadas foram vazão de suspensão (W_s), para os valores: 6,4, 11 e 18 g/min e pressão de atomização (P_{at}) nos seguintes níveis: 10, 15 e 20 psig. A temperatura do ar de entrada do leito foi mantida constante em 70 °C, bem como o tamanho da partícula na faixa de 300 – 420 μm . Para o desenvolvimento do estudo foi utilizado um planejamento fatorial 3^2 , e a influência das condições operacionais foi investigada nas variáveis resposta: eficiência do processo, crescimento relativo de partículas, índice de aglomerados e saturação instantânea até o completo colapso. A eficiência do processo variou de 51 a 99,7 %, o crescimento de partículas foi característico de recobrimento do tipo filme, o índice de aglomerados variou de 0,38 a 6,28 % e a saturação instantânea de $5,370 \cdot 10^{-3}$ a $16,828 \cdot 10^{-3}$ (min^{-1}). As observações feitas durante os experimentos, apontaram que o colapso do leito está relacionado com a saturação das partículas, já que a porosidade do leito diminui com o aumento da saturação, fazendo com que as partículas empacotem com a conseqüente defluidização do leito.

Palavras chave: Recobrimento, Leito fluidizado, Fluidização, Celulose Microcristalina.

ABSTRACT

The coating of granular materials is an operation widely used by the Pharmaceutical industry with diverse purposes: to improve the product appearance, to obtain a product with controlled release of active components, to facilitate the administration through the attainment of a smooth surface, to identify the drug by colors, to protect the drug from atmospheric agents as, light, oxygen, among others. In this work, the fluid dynamics and the coating of microcrystalline cellulose - MICROCEL, which is the main excipient used in the pharmaceutical industry, was analyzed. An aqueous polymeric suspension of Eudragit® was used as the coating liquid in a fluidized bed. The suspension was continuously sprayed on the granules by a double-fluid nozzle located at the top of the bed. The objective of this work was to analyze the fluid-dynamics of a fluidized bed during the coating process, using particles of type B according to Geldart classification, aiming at the identification of the bed saturation (instability and/or fluidized regime collapse) and relating it to the operating conditions. The independent variables analyzed were the flow rate of coating suspension (W_s), for the values: 6.4, 11.0 and 18.0 g/min and the atomization pressure (P_{at}) in the following levels: 10, 15 and 20 psig. The inlet air temperature of the bed was kept constant at 70 °C, as well as the size of the particles, in the range of 0.30 – 0.42 mm. A 3^2 factorial design was employed to evaluate the influences of the operating conditions on the responses: the process efficiency, the particles growth, the agglomerate formation and the instantaneous saturation until the bed collapse. The process efficiency varied from 51 to 99,7 %, the particles growth was characteristic of a film coating, the agglomerates index varied from 0.38 to 6.28 % and the bed instantaneous saturation from $5.370 \cdot 10^{-3}$ to $16.828 \cdot 10^{-3}$ (min^{-1}). During the experiments, it was observed that the fluidized regime collapse is related to the bed saturation, since the bed porosity decreases with the saturation increase, with consequent packing of the particles and collapse of the bed regime.

Key-words: Coating, Fluidized bed, Fluidization, Microcrystalline Cellulose.

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 2.1 -	Diagrama simplificado de classificação de partículas para fluidização através de ar em condições normais (GELDART, 1986).	6
Figura 2.2 -	Regime de fluidização em função da velocidade específica do gás.	8
Figura 2.3 -	Qualidade de fluidização através da influência do tipo de distribuidor (KUNII e LEVENSPIEL, 1991).	12
Figura 2.4 -	Exemplo de distribuidores de gás para leito fluidizado, (KUNII LEVENSPIEL, 1991).	13
Figura 2.5 -	Processo Wurster. (A) Câmara de Recobrimento; (B) Separador; (C) Placa Distribuidora; (D) Bico Atomizador.	15
Figura 2.6 -	Liberação (%) em função do tempo de recobrimento para os diferentes tipos de recobrimento (KLEINBACH & RIEDE, 1995).	17
Figura 2.7 -	Mesnard-Rosen-Scottair equipamento de suspensão (CALDWELL e ROSEN, 1964).	19
Figura 2.8 -	Exemplos de forças de ligação que atuam no processo de aglomeração.	26
Figura 2.9 -	Mecanismo de aglomeração por nucleação (KADAM, 1991).	29
Figura 2.10 -	Mecanismo de aglomeração por coalescência (KADAM, 1991).	29
Figura 2.11 -	Mecanismo de aglomeração por crescimento (KADAM, 1991).	30
Figura 2.12 -	Mecanismo de aglomeração por formação de camadas (KADAM, 1991).	30
Figura 2.13 -	Influência do teor de umidade do material na velocidade de mínima fluidização de esferas de vidro e areia (STRUMILLO e KUDRA, 1986).	41

Figura 2.14 -	Efeito da viscosidade e do volume de líquido adicionado no comportamento de um leito, segundo Geldart (McLAUGHLIN e RHODES, 2001).	45
Figura 2.15 -	Comparação das forças interpartícula, com o diâmetro da partícula (as linhas tracejadas indicam o contato com o plano da superfície rugosa) (SEVILLE <i>et al.</i> (1997).	47
Figura 3.1 -	Esquema do equipamento experimental, SILVA (2000)	52
Figura 3.2 -	Diagrama esquemático da placa distribuidora de ar.	52
Figura 3.3 -	Detalhes do leito fluidizado.	53
Figura 3.4 -	Corte longitudinal de um bico atomizador a ar.	55
Figura 3.5 -	Fotografia da amostra de MICROCEL, MC – 500.	57
Figura 3.6 -	Círculo inscrito e circunscrito numa imagem projetada de uma partícula.	57
Figura 4.1 -	Curva característica de fluidização com carga de 0,8 Kg, de celulose microcristalinas – MICROCEL.	66
Figura 4.2 -	Identificação das partículas de celulose microcristalina utilizadas neste trabalho no diagrama de Geldart.	67
Figura 4.3 -	Comparação de curvas características de fluidização para diferentes cargas de celulose microcristalina - MICROCEL - no leito.	68
Figura 4.4 -	Influência do ar de atomização durante a fluidização.	70
Figura 4.5 -	Evolução da umidade das partículas no processo de recobrimento em diferentes vazões de suspensão e mesma pressão.	71

Figura 4.6	Fotografia e esquema do mecanismo de formação do canal central, mudança de regime fluidizado para o jato no momento em que o leito tende ao colapso.	73
Figura 4.7 -	Esquema do processo de recobrimento (ROCHA, 2001).	74
Figura 4.8 -	Fotografia de um aglomerado obtido durante o processo de recobrimento, nas condições do ensaio 04 ($W_s = 11$ g/min e $P_{at} = 15$ psig), dimensões 4,6 x 5,1 mm.	77
Figura 4.9-	Evolução da umidade em relação ao tempo de processo.	79
Figura 4.10 -	Evolução da umidade e da queda de pressão em função do tempo para cada vazão de suspensão e pressão de atomização trabalhada.	81
Figura 4.11 -	Diagrama de Pareto para a eficiência do processo.	86
Figura 4.12 -	Diagrama de Pareto para o crescimento de partícula	87
Figura 4.13 -	Valores observados em função dos valores preditos - χ (Crescimento).	88
Figura 4.14 -	Distribuição dos resíduos - χ (Crescimento).	89
Figura 4.15 -	Diagrama de Pareto para os aglomerados	90
Figura 4.16 -	Diagrama de Pareto para a saturação instantânea.	91
Figura 4.17 -	Fotografia óptica das partículas de celulose microcristalina MC-500 para o experimento 2, (a) partículas recobertas; (b) aglomerados formados (dimensão aproximada 5 x 4,5 mm).	92
Figura 4.18-	Fotografia óptica das partículas de celulose microcristalina MC-500 para o experimento 7, (a) partículas recobertas; (b) aglomerados formados (dimensão aproximada 5,2 x 3,8 mm).	93

Figura 4.19 - Fotografia óptica das partículas de celulose microcristalina MC-500 93 para o experimento 9, (a) partículas recobertas; (b) aglomerados (dimensão aproximada 3,36 x 2,90 mm). formados.

ÍNDICE DE QUADROS E TABELAS

Tabela 2.1 -	Parâmetros de processo envolvidos no recobrimento de partículas por aspersão (MAA <i>et al.</i> , 1996).	16
Tabela 2.2 -	Condições operacionais para os testes realizados por KAGE <i>et al.</i> (1996).	23
Quadro 2.1 -	Processos mecânicos por combinação e separação (PIETSCH, 1997).	26
Tabela 2.3 -	Fenômeno da aglomeração nos processos mecânicos. PIETSCH (1997).	28
Tabela 3.1 -	Características da MICROCEL (SILVA, 2003).	49
Tabela 3.2 -	Composição da suspensão de recobrimento, DONIDA (2000).	50
Tabela 3.3 -	Variação no tamanho das gotículas de aspersão em função da vazão e pressão de atomização (Catálogo Spraying Systems nº 35).	54
Tabela 3.4 -	Variáveis Independentes e seus níveis para o planejamento experimental.	63
Tabela 4.1 -	Características da celulose microcristalina, MICROCEL, fornecida pelo fabricante (BLENVER FARMOQUÍMICA LTDA.).	65
Tabela 4.2 -	Queda de pressão, e velocidade de mínima fluidização em função da carga de partículas.	68
Tabela 4.3 -	Resultados experimentais dos ensaios de recobrimento com os finos.	75
Tabela 4.4	Resultado para o crescimento relativo de partículas para um tempo fixo de 20 min.	76
Tabela 4.5 -	Resultados do planejamento fatorial 3^2 – Matriz das variáveis independentes e variáveis resposta para os ensaios de recobrimento.	82
Tabela 4.6 -	Comparação de resultados para pressão de atomização de 10 psig.	83

Tabela 4.7 -	Comparação de resultados para pressão de atomização de 15 psig.	83
Tabela 4.8 -	Comparação de resultados para pressão de atomização de 20 psig.	84
Tabela 4.9 -	Estimativa dos efeitos para a eficiência do processo.	85
Tabela 4.10 -	Estimativa dos efeitos para o crescimento de partículas.	86
Tabela 4.11 -	Análise de variância – crescimento relativo de partículas no processo de recobrimento.	87
Tabela 4.12 -	Estimativa dos efeitos para o índice de aglomeração.	89
Tabela 4.13-	Estimativa dos efeitos para a saturação instantânea.	90

NOMENCLATURA

A	área da seção transversal	m ²
Agl	índice de aglomeração	%
AF	área do furo	mm ²
CD	coeficiente de arraste	-
C	concentração de sólidos	-
d	diâmetro	μm
E	eficiência de evaporação	-
F	força	dina
g	aceleração gravitacional	m/s ²
H	altura de mínima fluidização	cm
k	constante	min ⁻¹
NF	numero de furos	-
M	massa	g
P	pressão de atomização	kPa
Q	vazão de ar	kg/min
Re	número de Reynolds = $\frac{dU \rho_g}{\mu}$	-
S	grau de saturação	-
S'	grau de saturação instatâneo	min ⁻¹
t	tempo	min
T	temperatura do gás	°C
U	velocidade superficial do gás	cm/s
V	volume	m ³
W	vazão da suspensão de recobrimento	g/min
WC	taxa de crescimento	-
Y	umidade absoluta do ar	kg/kg
x	fração mássica das partículas	%
X	umidade das partículas	%

Subscrito

1	na entrada do leito
2	na saída do leito
agl	aglomerados
ap	aparente
at	atomização
ar	ar de fluidização
B	regime de bolhas
cc	circunferencia circunscritiva
ci	circunferencia inscrita
d	arraste
D	placa distribuidora
est	estática na linha de ar em cm H ₂ O
f	relativo ao final do experimento
g	gás
i	inicial
int	efetiva interpartícula
L	relativo ao leito de partículas
mb	condição de mínima bolha
mf	condição de mínima fluidização
o	condição inicial do experimento
OL	relativo ao leito
p	partícula
r	recobrimento
t	relativo a quantidade total
s	suspensão de recobrimento
sol	sólidos
sat	relativo a saturação

Letras gregas

α	constante de proporcionalidade	-
χ	crescimento relativo de partículas	%
δ	espessura média do revestimento	μm
ΔP	queda de pressão	Pa
ε	porosidade do leito	-
η	eficiência do processo de recobrimento	%
λ	razão entre a força interpartícula e a força de arraste do fluido	-
ρ	densidade	g/cm^3
μ	viscosidade	g/cm
ω	constante da equação (2.13)	-
v	velocidade da partícula	cm/s

CAPÍTULO 1

INTRODUÇÃO

A técnica de recobrimento consiste em revestir diferentes tipos de partículas, como por exemplo, comprimidos e pílulas, com uma camada de material com a finalidade de proteger essas partículas à exposição atmosférica como luz, umidade, temperatura, entre outros, armazenando-as por longos períodos, mantendo as características físicas e químicas do produto. Esse processo pode ser incluído na definição global de “tecnologias de partículas”. Além da proteção, a aplicação do recobrimento sobre a superfície das partículas tem diversas contribuições, que vão desde fatores estéticos até o controle da liberação de substâncias químicas. O conhecimento e o desenvolvimento de processos visando o recobrimento de partículas têm sido de fundamental importância nas áreas farmacêutica, alimentícia, química e nuclear (ROCHA, 2001). O recobrimento de produtos farmacêuticos, com soluções açucaradas é uma operação bastante antiga, desde o século XVII, tendo apresentado uma evolução significativa a partir dos anos 50, quando foram introduzidos novos conceitos em equipamentos para recobrir e, nos anos 70, quando foi iniciado o recobrimento com materiais poliméricos formadores de filmes (ROCHA, 1992). As principais vantagens do recobrimento por filme ou película são: tempo de processo e custo de mão-de-obra reduzidos, pequeno acréscimo de peso das partículas e possibilidade de modificar a dissolução do fármaco. Os materiais e os equipamentos de recobrimento contribuem para os programas contínuos de desenvolvimento e aperfeiçoamento da tecnologia farmacêutica. Como uma escolha viável do equipamento recobridor, tem-se o leito fluidizado que é adequado para recobrimento de partículas pequenas.

Atualmente, medicamentos envolvendo microgrânulos recobertos têm recebido especial atenção dos pesquisadores e do mercado de fármacos. Microgrânulos, segundo a farmacologia, são partículas com diâmetro na faixa de 100 a 800 μm , usados como excipiente para fabricação de comprimidos e cápsulas, aos quais é misturado o princípio ativo do medicamento. As partículas nessa faixa de tamanho são, em geral, bem processadas em leito fluidizado (GELDART, 1986). O uso de microgrânulos revestidos apresenta vantagens importantes como:

- possibilidade de controlar a dosagem e o tempo de liberação da droga;
- adição em alimento sólido ou líquido para facilitar administração à criança ou idoso;
- formulação com liberação modificada: liberação sustentada, prolongada, repetida ou retardada.

A tecnologia de recobrimento de microgrânulos envolve o desenvolvimento de formulações de soluções e suspensões de recobrimento, bem como do processo e do equipamento para recobrir.

A literatura apresenta trabalhos sobre recobrimento de microgrânulos em leito fluidizado, visando principalmente a análise do produto com relação à formulação, presença de aditivos e eficiência na cinética de liberação (CHANGE e RUDNIC, 1991; ICHIKAWA *et al.*, 1994; BECKERT *et al.*, 1996 e ALTAF *et al.*, 1998). Todavia, estudos sobre o processo com base nas variáveis operacionais são limitados. O trabalho de SILVA e ROCHA (2002) envolve esse aspecto, analisando a eficiência do processo de recobrimento de MICROCEL, celulose microcristalina em função das condições operacionais. O processo de recobrimento em leito fluidizado deve ser rigorosamente controlado, pois qualquer modificação nas variáveis operacionais como vazão de suspensão, temperatura e umidade relativa do ar e pressão do ar de atomização pode levar ao encharcamento do leito, com formação de aglomerados indesejados ou mesmo o colapso do leito (SILVA e ROCHA, 2002). Nesse mesmo trabalho, os autores verificaram que a melhor maneira de operar o leito é com intermitência na adição de suspensão de recobrimento para evitar os efeitos indesejados citados.

Dando continuidade ao projeto de pesquisa envolvendo o leito fluidizado como equipamento recobridor, o objetivo deste trabalho é analisar a fluidodinâmica do recobrimento em leito fluidizado, utilizando um sólido do grupo B de Geldart visando a identificação da saturação (instabilidade e/ou colapso) do leito e relacionando-a com as condições operacionais. Essa identificação permitirá a pré-definição do momento de intermitência do processo, sem o comprometimento da qualidade do produto.

As seguintes etapas são propostas para o desenvolvimento deste trabalho:

- estudo da fluidodinâmica do material no leito fluidizado, sem recobrimento, no mesmo leito;
- estudo da fluidodinâmica a seco, mas com pressão de atomização, verificando a influência da atomização na qualidade da fluidização do material;
- estudo da fluidodinâmica durante o recobrimento identificando o índice de aglomerados e a saturação do leito (formação de zonas mortas, canais preferenciais ou colapso do regime) em função das condições de operação vazão de suspensão e pressão de atomização;
- procurar estabelecer critério (s) para a saturação do leito com base no estudo fluidodinâmico realizado.

CAPÍTULO 2

REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 – Fundamentos de fluidização

2.1.1 – Introdução

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

O estudo da fluidização envolve a avaliação dos parâmetros fluidodinâmicos como a velocidade e a porosidade mínima de fluidização. Estes parâmetros são obtidos a partir do levantamento das curvas características de queda de pressão em função da velocidade superficial do fluido. Estes parâmetros são essenciais para o dimensionamento de equipamentos em leito fluidizado.

Os parâmetros fluidodinâmicos, velocidade e porosidade mínima de fluidização, podem ser estimados por equações empíricas e semi-empíricas, como a equação de WEN e YU e a equação de GELDART e ABRAHAMSEN, apresentadas posteriormente (KUNII e LEVENSPIEL, 1991).

2.1.2 – Características das partículas

Com relação ao comportamento quando colocadas em um leito percolado por um fluido, as partículas podem ser divididas em quatro categorias, de acordo com GELDART (1986), e são classificadas em C, A, B e D, como mostra a Figura 2.1:

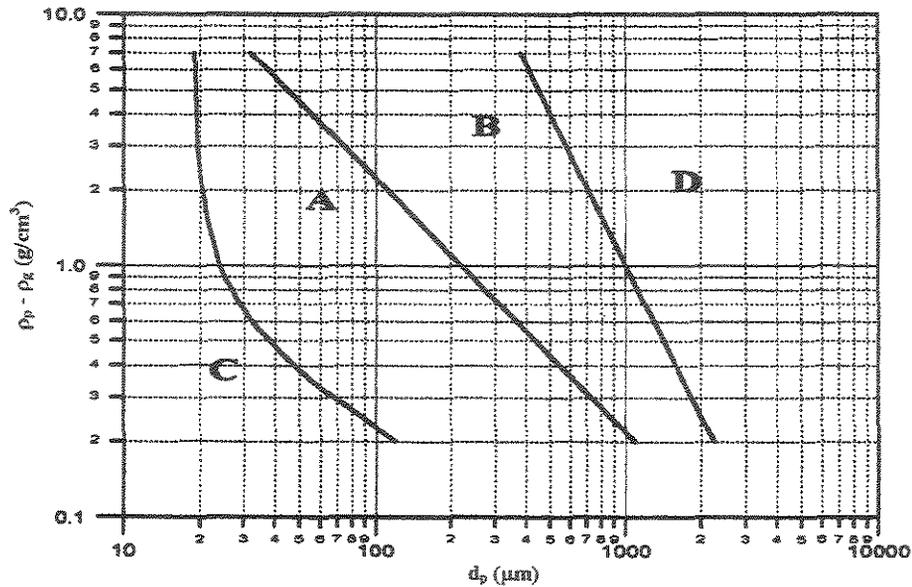


Figura 2.1 - Diagrama simplificado de classificação de partículas para fluidização através de ar em condições normais (GELDART, 1986).

Grupo C: Partículas coesivas e muito finas. Normalmente a fluidização é extremamente difícil, devido às forças interpartículas serem maiores que a resultante da ação do gás. Em leitos de pequeno diâmetro estas partículas tendem a elevar-se como um bloco de sólidos, ao passo que em leitos de grande diâmetro, canais preferenciais formam-se do distribuidor à superfície do leito, não havendo fluidização dos sólidos.

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

- as bolhas têm movimentos ascendentes mais rápidos que o gás;
- as bolhas surgem após o distribuidor, dividem-se e coalescem quando sobem em direção à superfície do leito;

- em leito raso, só há uma boa mistura das partículas, quando poucas bolhas estão presentes;
- quando estas bolhas atingem o diâmetro do leito, o regime muda para pistão

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

Grupo D: Refere-se aos materiais densos e de diâmetros importantes ($d_p > 600 \mu\text{m}$). Requer alta velocidade para fluidizar e proporciona baixa expansão do leito e baixa mistura de sólidos. Para fluidizar estas partículas utiliza-se distribuidor particular favorecendo a fluidização do tipo leito de jorro. As bolhas têm movimentos ascendentes mais lentos que o gás e quando atingem o diâmetro do leito, observa-se o “slugging” ou pistão.

Outras áreas de estudo procuram localizar mais claramente os limites (fronteiras) entre as regiões que delimitam o tipo de sólido. Estes não dependeriam somente da densidade e do tamanho médio de partícula, mas também da relação U/U_{mf} , das propriedades do gás e da distribuição de tamanho do sólido (Grace, 1986).

2.1.3 – Regimes de Fluidização

A fluidização pode ser dividida em vários regimes, verificados por GRACE (1984), como mostra a Figura 2.2.

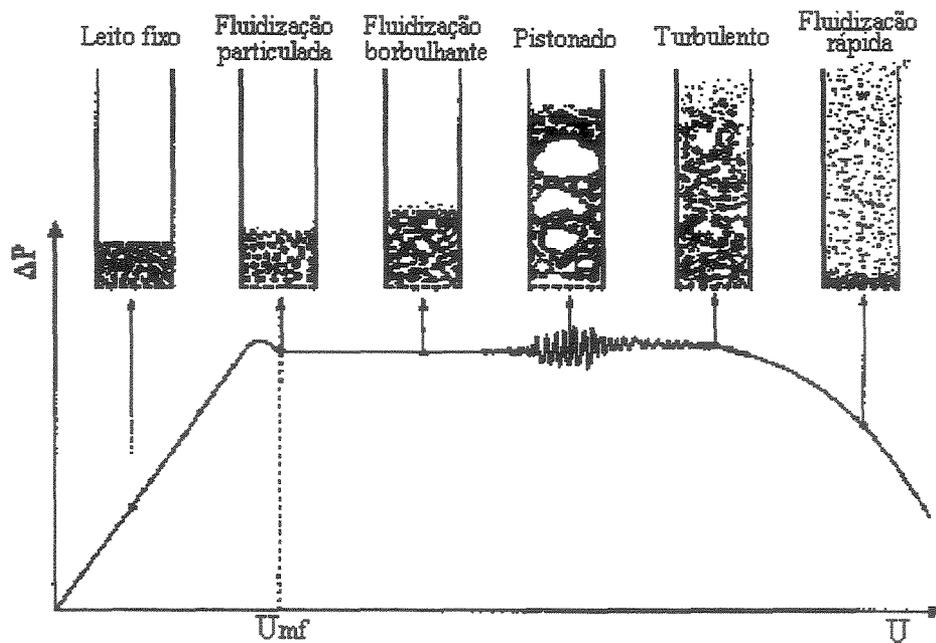


Figura 2.2 – Regime de fluidização em função da velocidade específica do gás.

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

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

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

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

Fluidização turbulenta: Com velocidade do gás entre a mínima para a fluidização turbulenta e a velocidade terminal das partículas. São observadas pequenas regiões de vazios e movimentos desordenados de partículas com formação de bolhas

instáveis, a superfície superior é indefinida e pequenas flutuações de pressão são observadas.

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

Transporte pneumático: A velocidade do gás é superior a da fluidização. Não há praticamente partículas descendentes próximo a superfície do distribuidor de ar. As partículas são arrastadas do leito.

2.1.4 – Modelos para os parâmetros de fluidização

Para a compreensão do mecanismo da fluidização de sólidos em determinado processo, faz-se necessária a determinação de parâmetros fluidodinâmicos, como velocidade, porosidade e pressão de mínima fluidização, que traduzem o comportamento do leito poroso quando da passagem do leito fixo para o fluidizado. Para que tais parâmetros possam ser determinados e avaliados, deve-se analisar o efeito da velocidade superficial do fluido sobre o gradiente de pressão. Este estudo é essencial não só para o projeto de câmaras em leito fluidizado, como também para a avaliação das condições de um equipamento já projetado.

Velocidade de mínima fluidização: A velocidade de mínima fluidização corresponde à velocidade superficial do gás em que a perda de pressão se iguala ao peso aparente de sólidos. Nestas condições, imediatamente, a fluidização é iniciada. Dentre as correlações existentes para estimativa da velocidade de mínima fluidização pode-se destacar, para o presente trabalho, as seguintes:

a) WEN e YU (1966) utilizaram a equação de Ergun para partículas esféricas e não esféricas, para qualquer faixa de Reynolds. Foram feitas duas considerações:

1 – a equação de Ergun é válida para a condição de mínima fluidização;

2 – a porosidade de mínima fluidização, ε_{mf} , depende do fator de forma de acordo com as relações:

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

Baseado nestas duas considerações, a Equação de Ergun se torna:

$$\text{Re}_{mf} = \left[33,7^2 + 0,0408 \frac{d_p^3 \rho_g (\rho_p - \rho_g) \cdot g}{\mu^2} \right]^{0,5} - 33,7 \quad (2.1)$$

b) KUNII e LEVENSPIEL (1991) apresentaram duas correlações empíricas para partículas grandes e pequenas, ou seja, que apresentam Números de Reynolds menores que 20 e maiores que 1000, respectivamente,

$$U_{mf} = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_g) g}{1650 \mu} \quad \text{Partículas pequenas e } \text{Re}_p < 20 \quad (2.2)$$

$$U_{mf}^2 = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_g) g}{24,5 \rho_g} \quad \text{Partículas grandes e } \text{Re}_p > 1000 \quad (2.3)$$

GELDART e ABRAHAMSEN (1981) propuseram uma correlação empírica para partículas pequenas (< 100 μm), como:

$$U_{mf} = \frac{(\rho_p - \rho_g)^{0,934} g^{0,934} d_p^{1,8}}{111 \mu^{0,87} \rho_p^{0,066}} \quad (m/s) \quad (2.4)$$

Onde ρ_g é a densidade do gás (Kg/m^3), ρ_p é a densidade da partícula (Kg/m^3), d_p diâmetro da partícula (m) e μ viscosidade do gás (Kg/m.s).

A partir da velocidade de mínima fluidização pode-se estimar a velocidade de operação (velocidade superficial) do leito fluidizado. A velocidade de operação é um parâmetro muito importante para o dimensionamento de uma câmara em leito fluidizado, já que vai garantir o regime de fluidização.

Porosidade de mínima fluidização: A porosidade mínima de fluidização (ε_{mf}) corresponde à porosidade do leito quando este é submetido à velocidade de mínima fluidização.

$$\Delta P \cdot A = A \cdot H_{mf} (1 - \varepsilon_{mf}) \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g \quad (2.5)$$

rearranjando a equação (2.1), chega-se a seguinte equação, para o cálculo da porosidade mínima de fluidização:

$$\varepsilon_{mf} = 1 - \frac{\Delta P}{H_{mf}(\rho_p - \rho_g)g} \quad (2.6)$$

A equação (2.6) pode ser usada para o cálculo da porosidade do leito em função de queda de pressão e a altura do leito na mínima fluidização.

2.2 – Distribuição de gás para leito fluidizado

Há bastante tempo é comum o uso de placas porosas de bronze sinterizado, plástico sinterizado ou aço inox como distribuidores de leito fluidizado em escala de laboratório.

Esta prática tem diminuído recentemente, pelas seguintes razões:

- as placas sinterizadas podem sofrer variações na espessura ou permeabilidade, provocando regiões mortas e regiões de alto escoamento;
- as placas destes materiais são caras, frágeis e de difícil operação;
- os resultados não são muito utilizados para aumento de escala, já que a placa porosa sinterizada proporciona a formação de bolhas pequenas, nem sempre conveniente em operações industriais.

As placas perfuradas são as mais utilizadas em leitos fluidizados, tanto em escala de laboratório como industrial. A perda de carga através da placa perfurada, ΔP_D , pode ser calculada pela Equação (2.7), (GELDART, 1986):

$$U.A = CD.NF.AF \sqrt{\frac{2\Delta P_D}{\rho_g}} \quad (2.7)$$

em que : CD– coeficiente de descarga

ΔP_D – perda de carga na placa distribuidora

NF – número de furos da placa

AF – área do furo

A razão entre ΔP_D e a perda de carga no leito deve estar na faixa de 0,1 a 0,5 com valores mais altos para materiais difíceis de fluidizar, para leitos rasos ($H/D > 0,5$) e aplicações sensíveis ao tamanho de bolhas.

2.2.1 – Escolha do tipo de distribuidor

Segundo KUNII e LEVENSPIEL (1991), baseado em experimentos de GROHSE (1955), o tamanho e distribuição das bolhas num regime de fluidização são fortemente influenciados pelo tipo de distribuidor utilizado. Esta observação é apresentada através da Figura 2.3 mostrada em seguida:

- com poucas aberturas na entrada de ar, a flutuação na densidade do leito é desprezível para qualquer vazão, a densidade do leito varia com a altura e com a canalização do gás;
- com muitas aberturas na entrada de ar, a flutuação na densidade do leito é desprezível para baixas vazões de ar;
- a densidade do leito é mais uniforme, com bolhas menores e maior contato gás/partícula.

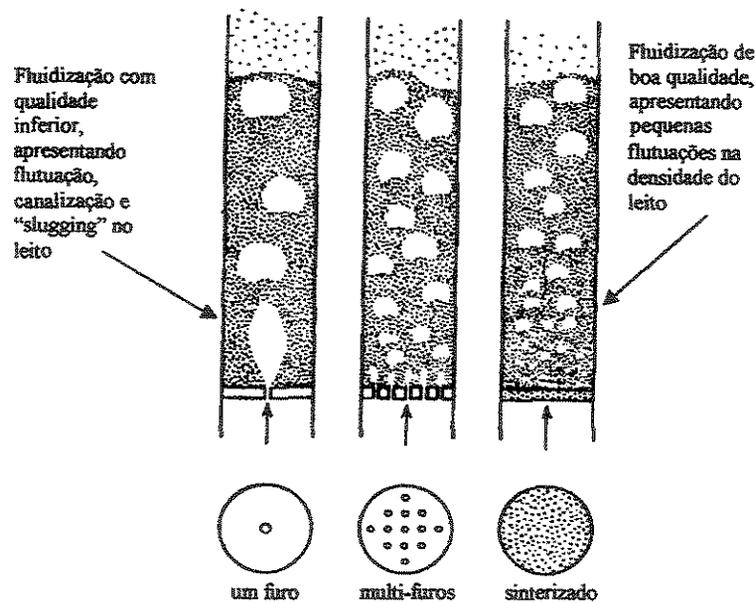


Figura 2.3 – Qualidade de fluidização através da influência do tipo de distribuidor (KUNII e LEVENSPIEL, 1991).

Na Figura 2.4 são apresentados vários tipos de distribuidores para leito fluidizado:

- a) placa simples, plana e perfurada – geralmente usada em escala de laboratório, apresenta desvantagem quando as partículas pequenas obstruem os orifícios;
- b) dois pratos perfurados sobrepostos e sem tela – este tipo pode resolver os problemas apresentados no item (a). É conveniente para uso em escala industrial, e de fácil construção, com boa distribuição de gás;
- c) côncava e perfurada – suporta melhor um leito de partículas pesadas e as tensões térmicas; ajuda a prevenir canais e borbulhamento preferenciais, que podem ocorrer próximo ao centro do leito fluidizado; promove um bom contato, e alta mistura de sólidos;
- d) fendas entre barras em forma de grade – possui características da placa perfurada, mas com menor distribuição de gás;

A experiência tem mostrado que os distribuidores tipo defletores melhora de forma considerável o contato gás-partículas pela quebra no crescimento das bolhas, sem, no entanto comprometer o projeto do equipamento pelo aumento da perda de carga no leito.

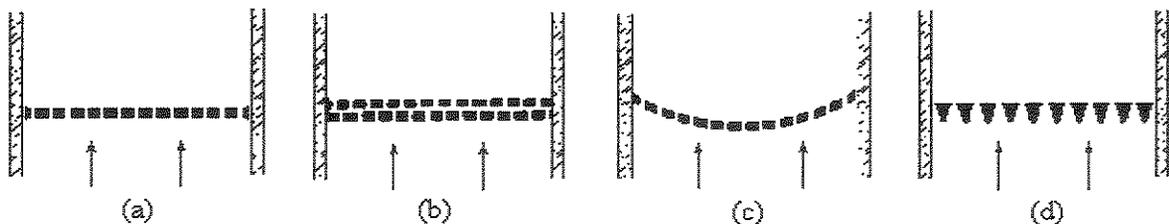


Figura 2.4 – Exemplo de distribuidores de gás para leito fluidizado, (KUNII LEVENSPIEL, 1991).

2.3 – Recobrimento e secagem em leito fluidizado

O secador que proporciona um contato mais íntimo entre o material e o gás de secagem apresenta uma operação mais eficiente. Dentre os possíveis destaca-se o secador em leito fluidizado, (KUNII & LEVENSPIEL, 1991), cujo princípio baseia-se no contato sólido-fluido através da fluidização das partículas sólidas de um leito de material granular por uma corrente ascendente de fluido aquecido.

Nos últimos anos a fluidização vem sendo bastante utilizada nos processos industriais em reações catalíticas, combustão, calcinação, granulação, recobrimento, extração de metais por flotação e principalmente em secagem de materiais em suspensão e granulados. A ampla utilização desse mecanismo de contato deve-se, principalmente a alta mobilidade e intensa mistura dos sólidos, permitindo altíssimas taxas de transferência de calor e massa e um elevado grau de uniformidade na temperatura no interior do leito e no produto gerado.

2.4 – Recobrimento de partículas em leito fluidizado

A qualidade dos produtos sólidos é determinada por sua composição química e propriedades físicas. Na indústria química e farmacêutica os processos de formulação são empregados para se obter os produtos com as propriedades desejadas. Uma técnica de formulação interessante é o recobrimento de sólidos. Faz-se recobrimento de sólidos com vários objetivos:

- a) ativar um catalisador por recobrimento;
- b) modificar, sustentar ou retardar o princípio ativo de um medicamento;
- c) colorir partículas;
- d) proteger sólidos contra higroscopicidade e produtos tóxicos;
- e) melhorar as propriedades de manuseio;

A proposta do recobrimento, desde o princípio, tem sido modificar as propriedades químicas e físicas das partículas tais como: sabor, aparência, taxa de dissolução, reatividade, fluidez, friabilidade, entre outras.

Os equipamentos e métodos utilizados na indústria farmacêutica para recobrimento de partículas sólidas incluem: drageadeiras, leito de jorro, leito fluidizado e compressão de comprimidos (ROBINSON *et al.*, 1968). O recobrimento de produtos farmacêuticos com soluções açucaradas para fins medicinais data do século XVII. Desde o princípio até hoje os equipamentos mais utilizados foram as drageadeiras. WURSTER (1953) patenteou um equipamento, Figura 2.5, que utiliza a suspensão das partículas por ar

quente, que mostrou uma boa eficiência no recobrimento de comprimidos com filme polimérico.

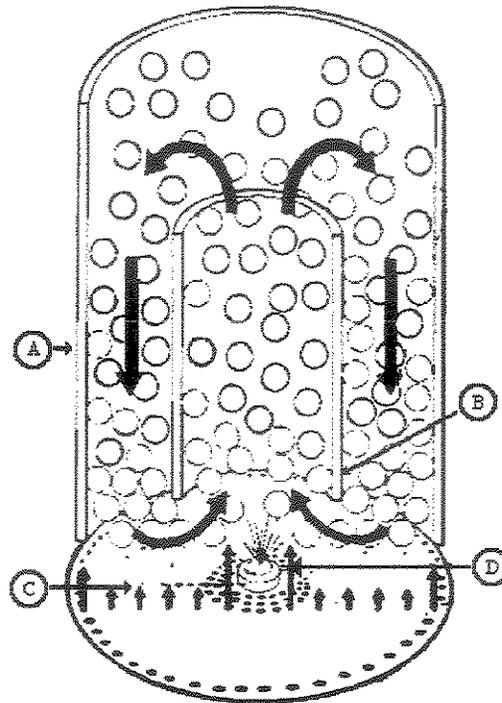


Figura 2.5 - Processo Wurster. (A) Câmara de Recobrimento; (B) Separador; (C) Placa Distribuidora; (D) Bico Atomizador.

Este processo foi denominado recobrimento em leito fluido, leito ativo ou leito móvel. O processo em leito móvel minimiza a abrasão e a irregularidade da distribuição da película causada pelo contato partícula/partícula. O leito fluidizado tem o mesmo princípio e pode operar com bateladas de 0,5 a 500 kg e partículas com diâmetros que variam de 50 μm até tamanhos maiores que os comprimidos. Mas a qualidade da fluidização é geralmente insatisfatória para partículas com $d_p > 1 \text{ mm}$. O projeto inicial de Wurster tem recebido mudanças significativas, principalmente no sentido de melhorar o projeto do bico atomizador e da distribuição do ar. Atualmente, há vários tipos de equipamentos para recobrimento em leito fluidizado testados em escala industrial, utilizando o bico atomizador na posição tangencial, na base e no topo (RHODES e PORTER, 1998). Apesar deste tipo de processo já ser utilizado na indústria farmacêutica, ele vem sendo estudado por alguns pesquisadores, com vistas a uma aplicação mais eficiente do recobrimento.

O princípio básico do recobrimento consta de um leito de partículas que é movimentado por uma corrente de gás ascendente e sobre as quais é aspergida uma solução de recobrimento. Esta solução reveste a partícula num processo simultâneo de molhamento e secagem até formar uma camada com características específicas (SILVA, 2003). O recobrimento por aspersão é um processo complexo que consiste de três importantes operações: fluidização, atomização e secagem. Para que um processo seja adequado são necessários o conhecimento e controle dos parâmetros envolvidos que são variáveis de operação, variáveis de projeto do equipamento e propriedades associadas à partícula e ao líquido de recobrimento. A Tabela 2.1 mostra os parâmetros envolvidos no processo de recobrimento por aspersão:

Tabela 2.1 – Parâmetros de processo envolvidos no recobrimento de partículas por aspersão (MAA *et al.*, 1996).

FLUIDIZAÇÃO	Vazão do ar de secagem Posição do bico de aspersão (topo, base ou tangencial) Projeto do leito (aço inoxidável, vidro, acrílico, dimensões, etc.) Tamanho e densidade da partícula Carga de partículas Material de recobrimento
ATOMIZAÇÃO	Vazão do ar de atomização Vazão de líquido (solução) Projeto do bico (mistura interna ou externa) Viscosidade, tensão superficial e densidade do líquido
SECAGEM	Temperatura de entrada do ar de secagem Vazão do ar de secagem Vazão de líquido (solução) Vazão do ar de atomização Concentração da solução

KLEINBACH e RIEDE (1995) classificaram o recobrimento nos seguintes tipos:

TIPO A – recobrimento ideal, são caracterizados pelo fato que os revestimentos em todas as partículas é integral com camada de espessura uniforme. A razão entre taxa de liberação do princípio ativo e o tempo é linear;

TIPO B – o recobrimento também é intacto, no entanto a espessura da camada varia. Em consequência disso, a quantidade de princípio ativo liberado em função do tempo

é não-linear. Inicialmente, o princípio ativo é liberado rapidamente, mas em seguida continua lentamente. As partículas com camada fina liberam rapidamente, enquanto as partículas com camada espessa liberam lentamente o princípio ativo;

TIPO C – diferente do tipo B, onde algumas partículas apresentam imperfeições na camada de recobrimento. Estas partículas liberam seu princípio ativo quase imediatamente, resultando numa descontinuidade na curva de liberação logo no início. Depois disto, a liberação segue como no tipo B. A Figura 2.6 ilustra os tipos de recobrimento descritos.

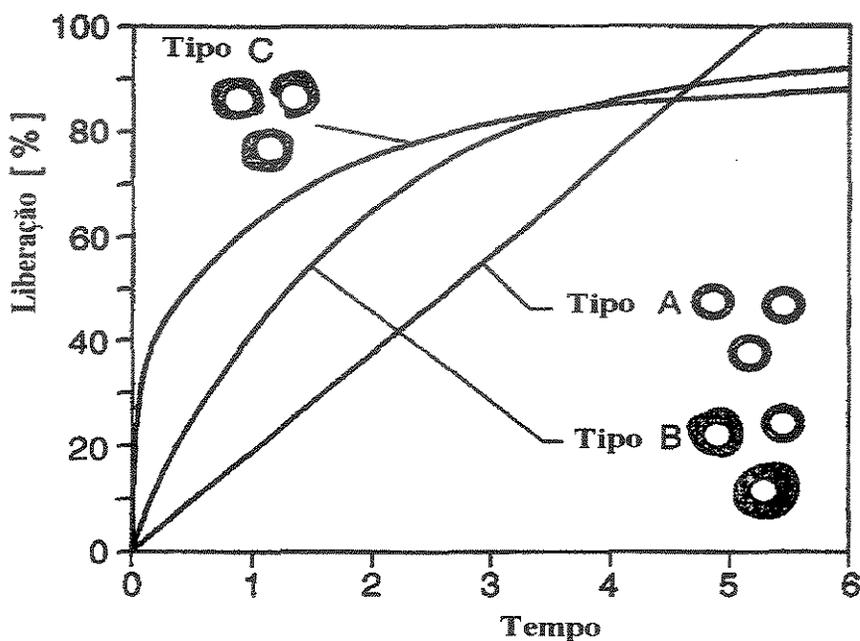


Figura 2.6 – Liberação (%) em função do tempo de recobrimento para os diferentes tipos de recobrimento (KLEINBACH & RIEDE, 1995).

Teoricamente pretende-se um recobrimento do tipo A, caso a finalidade seja obter um produto com liberação continuada do princípio ativo. Este tipo de recobrimento é obtido quando duas condições acontecem:

- cada partícula obtém a mesma quantidade de recobrimento;
- a camada de recobrimento sobre a superfície da partícula é uniforme.

De acordo com esta análise teórica, os autores determinaram experimentalmente a influência do movimento dos sólidos no projeto do leito fluidizado e na qualidade do recobrimento. Foram recobertas partículas do grupo D (segundo GELDART, 1986), 3,5 mm de diâmetro e 2 g/cm^3 de densidade, com velocidade mínima de fluidização de 1,6 m/s. A suspensão de recobrimento foi uma dispersão polimérica aquosa com teor de sólidos de 15 e 25 % em peso. A coluna em leito fluidizado é cônica com 14 cm de diâmetro e as partículas são fluidizadas por altas velocidades (de 3 a 4,6 m/s). O bico de atomização foi colocado na base do leito. A partir dos dados experimentais os autores verificaram que uma atomização da suspensão em gotículas proporciona uma boa distribuição do material de recobrimento sobre a superfície da partícula. Entretanto, a capacidade de dispersão das gotas pode ser reduzida pela secagem rápida das mesmas antes de atingirem a superfície da partícula, comprometendo a qualidade do recobrimento. Observaram que a temperatura do leito é determinante na secagem das gotículas sobre a partícula, e na secagem das gotículas antes da colisão com a partícula alterando a viscosidade do material de recobrimento. Para obtenção de uma qualidade satisfatória de recobrimento é necessário a definição adequada de parâmetros do processo, além disso, novas técnicas de laboratório associados a modelos teóricos, para minimizar o trabalho experimental no processo de recobrimento de um produto desejado.

SINGISER e LOWENTHAL (1961) recobriram comprimidos de 1cm de diâmetro com filme entérico. No trabalho faz-se uma modificação no equipamento proposto por WURSTER (1953), de maneira que a entrada de ar na parte inferior do leito, fosse de forma cônica. Esta alteração resultou num novo padrão de circulação para os comprimidos. A temperatura do ar na saída do leito (32 a 38 °C) e a umidade dos comprimidos representaram os parâmetros de controle para a descarga do leito e tempo de secagem. Utilizou-se três câmaras de recobrimento com 15,2, 25,4 e 38,10 cm e capacidade de 4, 20 e 40 kg de comprimidos, respectivamente. Como solução de recobrimento utilizou-se o padrão C.A.P (ftalato acetato de celulose), dissolvido em cetona e etanol na proporção de 625 ml de solução por quilo de comprimidos. A aplicação deste método apresentou as seguintes vantagens:

- a) após o recobrimento, os comprimidos apresentam uma superfície lisa;
- b) o procedimento automatizado não requereu habilidade técnica;

- c) não necessita acabamento após o recobrimento;
- d) aplicação rápida;
- e) perda de material na parede desprezível;
- f) não há escape de vapores do solvente no ambiente de trabalho;
- g) pequeno aumento de peso;
- h) solução de recobrimento uniforme em cada batelada.

Em comparação aos métodos convencionais, o processo em leito móvel leva 40 minutos para recobrir mais 20 minutos para secagem de uma mesma quantidade de comprimidos, que a drageadeira faz em duas horas.

CADWEL e ROSEN (1964) patentearam um equipamento para recobrimento por suspensão a ar, como modificação do processo Wurster. Este equipamento difere do projeto Wurster, primeiramente pelos materiais a serem recobertos serem suspensos por ar sem necessitar de uma tela de sustentação das partículas ou de outros dispositivos (como aletas) para regular a entrada de ar, em uma câmara expandida localizada acima de uma coluna vertical que fornece um amortecedor laminar do ar. Esta construção torna possível a aplicação de quantidades significativas de materiais de recobrimento e aqueles de natureza pastosa sem regular a taxa do fluxo de ar para manter os sólidos em suspensão à medida que seu peso aumenta pela aplicação do material de revestimento. Além disso, esta construção mostrada na Figura 2.7, torna possível o uso de um único equipamento para recobrimento variando as cargas de partículas.

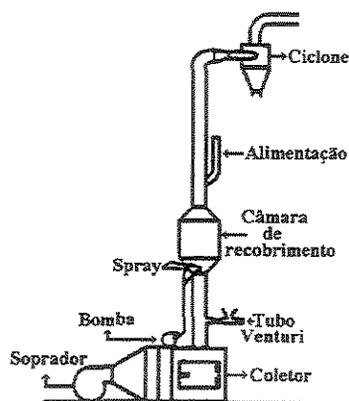


Figura 2.7 – Mesnard-Rosen-Scottair equipamento de suspensão (CALDWELL e ROSEN, 1964).

O equipamento opera em condições ótimas para uma carga de partículas de 10-25 kg. Foram recobertos “pellets” de açúcar e sulfato de cálcio na faixa de 40-16 mesh com soluções de glicídios dissolvidos em solventes orgânicos, aspergidas a partir da base do leito. Foi observada uma zona densa de partículas na região de aspersão, permitindo uma economia do material de recobrimento. A solução de recobrimento seca não aderida à partícula era arrastada e recolhida por um ciclone. A variável mais importante no processo foi a temperatura do ar de suspensão das partículas. A corrente de ar quente permitiu um recobrimento mais eficiente. Variando a temperatura de 40 para 50 °C, em bateladas com tempo semelhante, a porcentagem da droga liberada variou de 17 a 100 % quando submetida a teste de liberação num fluido gástrico (U.S.P). Conclui-se que o equipamento é versátil e pode ser utilizado no recobrimento de vários processos farmacêuticos como a aplicação em pós, pellets, comprimidos e cápsulas. Obteve-se alto grau de reprodutibilidade em condições similares e em escala industrial.

ROBINSON *et al.* (1968) apresentaram um projeto com descrição do equipamento e método de operação para o recobrimento de partículas sólidas. No processo, as partículas são movimentadas no leito por um fluxo de gás turbulento através de um bico ejetor de partículas, quando entra em contato com gotículas de líquido que são aspergidas por um bico atomizador que fica no topo do leito. Na zona de recobrimento, há uma mistura intensa, evitando que as gotículas de líquido sequem antes de atingir os sólidos. Foram recobertas partículas de açúcar na faixa de 710-840 µm com soluções de etilcelulose. Em seguida foram realizados testes de dissolução e verificou-se que o material recoberto foi liberado 81 %, em média, durante quatro horas. Também foram recobertos cristais de AAS (ácido acetil salicílico) com soluções de C.A.P (ftalato acetato de celulose). Para os testes de dissolução, utilizou-se dois meios de liberação: no fluido gástrico houve liberação de 4 a 9 % em quatro horas e no fluido intestinal, houve liberação acima de 98 % em 15 minutos. Mostrou-se que é possível recobrir partículas numa faixa de 10 a 1000 µm de diâmetro com diversas soluções de recobrimento. O estudo apresentou contribuição relevante para a tecnologia de recobrimento, com formulação e dosagem, para a indústria farmacêutica.

DAVIES e GLOOR (1971) utilizaram um granulador construído em aço inox com capacidade de 10 kg, para estudar o efeito das propriedades físicas dos grânulos e das variáveis de processo na granulação em leito fluidizado. O leito é constituído de partículas que aumenta de 35,6 cm a 53 cm, que corresponde à expansão do diâmetro. As partículas

de lactose, na faixa de 177 a 840 μm , foram suspensas por uma tela de distribuição e movimentadas por um elevador pneumático acoplado à base da coluna. O bico de atomização foi colocado no centro do leito a 72,4 cm acima da tela de retenção de partículas e para aspergir a solução granulante, foi operado a uma pressão de 1,5 kgf/cm^2 . A temperatura de granulação foi mantida em 50 $^{\circ}\text{C}$ e a vazão do ar de fluidização em 594,6 m^3/h . Foram analisadas: vazão de suspensão, pressão do ar, posição do bico de atomização e temperatura do ar de entrada. Os autores concluíram que:

- em processo de granulação em leito fluidizado, os grânulos são formados quando as partículas de pó são molhadas pela solução atomizada e aderem umas às outras quando é feito o contato no meio fluidizado aquecido.
- as propriedades físicas das granulações produzidas por este processo são dependentes das formulações individuais de granulação e das várias variáveis operacionais associadas com o processo.
- quando a taxa em que a solução aquosa da pasta adicionada ao leito fluidizado de pós aumenta, a capacidade da solução de molhar e penetrar os sólidos aumenta, tendo por resultado:
 - a) um aumento no tamanho médio do grânulo;
 - b) uma granulação menos friável, e;
 - c) uma diminuição no volume dos grânulos.
- a posição do bico de atomização, ou seja, a altura apresentou efeito significativo no tamanho e na friabilidade dos grânulos formados.

SMITH e NIENOW (1983), trabalharam com recobrimento de partículas de vidro e alumina por aglomeração em leito fluidizado. O objetivo do estudo foi de esclarecer os mecanismos de crescimento de partículas. O leito consta de uma coluna de vidro com 15 cm de diâmetro com placa perfurada no distribuidor. A solução de recobrimento foi a base de ácido benzóico e polietileno glicol (Carbowax 4000) dissolvidos em metanol. A ponta do bico atomizador coincide com a superfície do leito fixo, de modo que ao fluidizar este fica submerso, e o jato de aspersão tem um contato direto com as partículas. A escolha da posição do bico é importante para evitar que ocorram os seguintes problemas: aglomeração, quando o bico é colocado sobre o leito; encharcamento, quando o bico é colocado muito

próximo ao leito; elutrição, quando o bico é colocado bem distante do leito e as gotículas secam antes de colidir com as partículas. Foi analisado o crescimento da película por análise de peneiras, através de amostras retiradas do leito em intervalos de tempo pré-determinados. Utilizou-se a notação velocidade do gás em excesso. Para $(U - U_{mf}) = 0,15$ ou $0,275$ m/s, foi verificada aglomeração e para altas velocidades (acima de $U - U_{mf} = 0,525$ m/s), o mecanismo dominante é o crescimento da película, sendo este independente da velocidade do gás em excesso.

CHENG e TURTON (1994), fizeram estudos para determinar a uniformidade do recobrimento de partículas esféricas de 1 mm de diâmetro. Foi utilizado um leito fluidizado que consiste de uma coluna cilíndrica em acrílico com 6 in de diâmetro e um tubo central acoplado coaxialmente com o leito. Acima do tubo central, o leito é expandido para 9 in onde há a liberação das partículas. Na base do leito foi colocada uma placa distribuidora em aço inox, na qual foi acoplado o bico atomizador de suspensão. A variação da quantidade de material aderida às partículas durante cada batelada foi medida e avaliada com as variações nas condições de fluidização. Investigou-se estas variações com base na quantidade de material aderida à partícula e o número de vezes que a partícula cruza a zona de aspersão. Para isto foi proposto um modelo fenomenológico, baseado nos efeitos de obstrução ou retardamento da partícula nesta zona do leito. Para o modelo desenvolvido, foram feitas considerações com relação à interação de partículas e ao material de recobrimento:

- a) a zona de aspersão tem a forma de um cone oco;
- b) o movimento das partículas na zona de aspersão possui velocidade constante;
- c) a porosidade na zona de aspersão é constante;
- d) as partículas são distribuídas igualmente, sem interrupção entre o bico de aspersão e a parede interna do tubo central.

O modelo se mostrou preditivo, no entanto não apresentou condições satisfatórias com relação às mudanças na geometria do leito e nas condições de fluidização e uma maneira adequada para explicar a não-uniformidade na porosidade da zona de aspersão.

Ao estudarem a viabilidade do processo de recobrimento de lactose usando um recobridor em leito fluido do tipo Glatt (STREA-1) MAA *et al.* (1996), realizaram os

experimentos em bateladas de 0,2 e 0,5 kg. O leito consiste de uma unidade de controle, uma câmara de secagem e um bico de atomização duplo-fluido apresentando duas configurações: bico atomizador na base, com tubo central, e no topo do leito. A unidade de controle permite o acompanhamento do tempo de operação, vazão do ar de secagem, temperatura do ar de entrada, pressão de atomização e pressão do ar na saída do leito. Para comparar os resultados, foi testado um recobridor por aspersão (GPCG-1), com base no processo Wurster, utilizado em trabalho anterior (MAA e HSU, 1996). As partículas tinham duas frações de tamanho, 53-125 µm e tiveram aspersão com água pura, solução aquosa de lactose e solução aquosa da proteína rhDNase (recombinant human deoxyribonuclease). O desempenho do recobrimento foi baseado em três critérios: qualidade do produto, rendimento do produto e tempo de produção. Foi analisado o efeito dos parâmetros de operação, projeto do equipamento e formulação da proteína sobre o desempenho do recobrimento. De modo geral, o equipamento GPCG-1 produziu partículas com menor aglomeração e maior rendimento comparado ao STREA-1. Os melhores resultados foram observados quando se trabalhou com partículas na faixa de 125-250 µm, no equipamento GPCG-1, bico de atomização na base e a solução de recobrimento contendo 14 e 28 mg/ml da proteína Dnase.

KAGE *et al.* (1996) ao recobrir esferas de vidro com pós de nylon e sílica, em dispersões aquosas de PVA (álcool polivinil), teve como objetivo discutir o efeito das variáveis operacionais na eficiência do recobrimento. O equipamento experimental é uma coluna em leito fluidizado com 21 cm de diâmetro acoplada a uma parte cônica onde é inserida uma placa distribuidora com 10 cm de diâmetro. As condições em que foram realizados os experimentos são apresentados na Tabela 2.2 a seguir:

Tabela 2.2 – Condições operacionais para os testes realizados por KAGE *et al.* (1996).

Variáveis	Valor	Unidade
Vazão de suspensão	3 a 15x10 ⁻⁶	m ³ /min
Vazão do gás de entrada	0,9	m ³ /min
Temperatura do leito	55 a 125	°C
Temperatura da suspensão	30	°C

O recobrimento foi feito, com a suspensão aspergida 30 cm acima do leito de partículas. Foram retiradas pequenas amostras de partículas em intervalos de 5 e 10 minutos para analisar a massa aderida e a eficiência do recobrimento. A amostra foi imersa em água e após a dissolução, o pó foi separado e pesado. A temperatura e a concentração de nylon e de sílica na solução de recobrimento foram mantidas constantes. A baixas temperaturas e altas taxas de umidade do gás de entrada obtém-se uma melhor eficiência. Os autores observaram que a eficiência do recobrimento é determinada pelo teor de umidade da película formada.

As dificuldades encontradas durante o processo de recobrimento são originárias em diversos pontos, segundo LOPEZ (1995).

- Os defeitos relativos ao núcleo geralmente têm relação com dureza, aspereza e laminação.
- O preparo do material de recobrimento é outro ponto crítico. As formulações contendo pigmentos são susceptíveis a má dispersão dos sólidos, resultando em perdas das propriedades mecânicas do filme.
- O desequilíbrio entre o regime de aspersão e a secagem gera defeitos como superfície enrugada e a umidade excessiva na área de aspersão, provoca remoção parcial da camada de revestimento formada (*peeling*).
- As soluções concentradas são difíceis de serem aplicadas, de modo que a qualidade do recobrimento é baixa e a perda de material aumenta, pela secagem das gotículas. Estas soluções minimizam o tempo de processo. No entanto, pode resultar em aglomerado das partículas.
- O aumento da temperatura da solução de recobrimento diminui a viscosidade e facilita a aspersão sobre as partículas.
- A diminuição do tamanho das gotas, pelo aumento da pressão, aumenta a área total de aspersão, facilita a troca de calor, aumenta a evaporação e seca mais rápido as partículas recobertas.
- O aumento na temperatura do ar que movimenta as partículas, favorece a secagem do filme, mas deteriora a qualidade do recobrimento.

- O leque de aspersão, que sai do bico atomizador, deve ter o comprimento adequado para evitar que haja perda de material na parede do leito.

GUIGNON *et al.* (2003) investigaram os parâmetros operacionais para um processo de recobrimento em leito fluidizado. Trabalhando em um leito fluidizado Wurster, estudaram a possibilidade de recobrimento de vários tipos de partículas sólidas e soluções aquosas de recobrimento. Os materiais utilizados foram semolina de trigo, esferas de vidro, alumina, resina de poliestireno, plástico PMMA, com uma faixa de tamanho entre 125 e 1250 μm e densidade entre 500 e 2500 Kg m^{-3} . Os materiais para o recobrimento foram maltodextrina, goma acácia e cloreto de sódio em soluções aquosas, a vazão do ar de fluidização é determinada para cada tipo de partícula. Para cada solução de recobrimento a taxa de fluxo que conduz à aglomeração é considerada como o limite máximo do fluxo usado para recobrir. À aglomeração acontece se uma ponte líquida é estabelecida entre duas partículas e permanece até completa secagem então a ponte sólida tem a resistência a tensão mecânica da colisão com outras partículas.

A carga inicial para cada tipo de partícula foi de 500 g, vazão do ar de fluidização é mantida constante durante o processo. A massa de recobrimento introduzida representa no mínimo 15 % do total da massa inicial de partículas. Para os experimentos de recobrimento foram definidas três fases: circulação do ar e partículas para equilibrar a temperatura em 50 °C (10-15 min), aspersão com a solução de recobrimento com taxa constante do fluxo mantendo a temperatura em 50 ± 2 °C (25-33 min), e a secagem e esfriamento final (10-15min). A semolina, alumina e partículas de vidro foram recobertas com a solução de cloreto de sódio, maltodextrina e goma acácia. A resina e PMMA foram recobertas usando a solução de maltodextrina os experimentos foram feitos em triplicata. Observou-se que a massa do soluto fixada as partículas aumenta linearmente com o tempo. A maior adesão é observada para a goma acácia em partículas de alumina com um rendimento de 98 %. Para o recobrimento com cloreto de sódio depois de 15 min de pulverização da solução nas esferas de vidro a massa de recobrimento aderida as partículas não aumentaram.

Para dadas partículas recobertas sem aglomeração em um leito tipo Wurster, deve-se atentar para:

- o tamanho e a densidade das partículas para estimar a vazão do ar de fluidização adequada para uma boa circulação das partículas no leito.

- para a otimização da vazão de solução de recobrimento, a uma dada temperatura de secagem, deve-se avaliar as propriedades de adesão para cada par partícula-recobrimento (tensão superficial, viscosidade) e a área específicas das partículas.
- a estrutura do recobrimento (cristalino, amorfo), e a rugosidade da superfície da partícula para conhecer as características da adesão do recobrimento seco.

2.5 – Tecnologia de aglomeração

A aglomeração é definida como o aumento de tamanho de partículas, devido a mudanças na superfície do material particulado causado pelas forças de ligação entre partículas e um material ligante ou através das forças interpartículas.

A aglomeração é uma operação unitária que envolve a tecnologia de processos mecânicos. Os processos mecânicos podem ser classificados por processo de combinação e separação, produzindo partículas com e sem aumento de tamanho, respectivamente. O Quadro 2.1 mostra um resumo destas operações.

Quadro 2.1 – Processos mecânicos por combinação e separação (PIETSCH, 1997).

	COMBINAÇÃO	SEPARAÇÃO	
Sem mudar o tamanho da partícula	Mistura de pós e fabricação de blendas	Separação mecânica -filtro -classificador -peneira, etc	Estas mudanças ocorrem de acordo as características do sólido particulado (tamanho, volume, distribuição, forma, densidade, massa, porosidade, teor de umidade)
Com mudança de tamanho de partícula	Aumento de tamanho por AGLOMERAÇÃO	Redução de tamanho: -moinho -tritador	
Transporte, estocagem e manuseio de material			
Sólido			

A força dos aglomerados deriva da ação entre as forças ligantes que atuam entre os pontos de coordenação das partículas, nas interfaces ligante-partícula ou através da pressão capilar no preenchimento do volume de poro das partículas. A Figura 2.8 mostra exemplos de forças de ligação que atuam no processo de aglomeração.

Na letra (a) observa-se um exemplo de forças que atuam no processo de sinterização, fundição parcial e cristalização de substâncias solúveis. Em (b), as forças acontecem por reação química e ligações com suspensões de alta viscosidade. Outro tipo de ligação é através de ponte líquidas e cristalização de substâncias dissolvidas, letra (c). Em (d), atuam forças moleculares, forças eletrostáticas, forças magnéticas e forças de valência. Observa-se na letra (e), forças de acoplamento (interlocking) e por fim em (f), ocorrem forças capilares através de conglomerados, saturados de líquido.

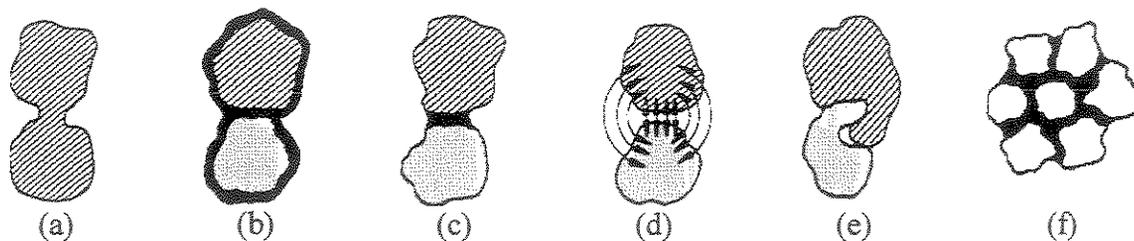


Figura 2.8 – Exemplos de forças de ligação que atuam no processo de aglomeração

Como mostrado anteriormente, o processo de aglomeração é uma operação na qual partículas pequenas se transformam em partículas maiores. Esta operação pode ocorrer em decorrência do processo, como no caso de peletização, compactação e *tableting* ou por formação de aglomerados a partir de pós-finos, como na aglomeração em leito fluidodinamicamente ativo e *prilling*.

Durante a produção e processamento de uma matriz sólida num sistema disperso, o fenômeno da aderência torna-se mais importante quanto menor for o tamanho da partícula, causando agregação, aglomeração, recobrimento e acúmulo. O tamanho crítico de partícula está em torno de 100 μm , mas é possível que partículas maiores sejam afetadas, devido à presença de uma grande fração de finos na distribuição ou se o mecanismo de aderência tornar-se efetivo. A aderência de materiais finamente divididos é observada durante a operação em engenharia de processos mecânicos e podem ser desejável ou indesejável. A Tabela 2.3 apresenta um resumo da ocorrência do fenômeno da aglomeração desejável e indesejável no processo de crescimento da partícula e mistura.

Tabela 2.3 – Fenômeno da aglomeração nos processos mecânicos. PIETSCH (1997).

OPERAÇÃO UNITÁRIA	PROCESSO	AGLOMERAÇÃO		
		Desejável	Indesejável	Depende
Mistura	Mistura seca		X	
	Mistura úmida			X
	Agitação		X	
	Suspensão		X	
	Dispersão		X	
	Leito Fluidizado			X
Aumento de tamanho de partícula	Aglomeração	X		
	Briquetagem	X		
	<i>Tabletting</i>	X		
	Recobrimento			X
	Peletização		X	
	Sinterização	X		

A maioria destes processos, inclusive o recobrimento, necessita do fenômeno da aglomeração para que haja crescimento de partículas. Todavia, a operação apresenta um lado indesejável neste processo, que é a tendência à aglomeração entre os substratos, provocando um decréscimo na eficiência, comprometendo a qualidade dos núcleos recobertos e causando, muitas vezes, um completo colapso do leito fluidodinamicamente ativo.

2.5.1 – Mecanismo de formação e crescimento de grânulos

De modo geral há quatro mecanismos principais no crescimento de partículas por aglomeração. Os mecanismos são:

- Nucleação
- Coalescência

- Crescimento
- Formação de camadas

Nucleação: De acordo com CAPES (1980), a formação de aglomerados pelo mecanismo de nucleação se torna mais evidente quando estes aglomerados têm diâmetro até 1 mm. Inicialmente, dois ou mais núcleos sólidos se formam e mantêm-se juntos através de pontes líquidas no estado pendular. O tamanho destes núcleos depende do tamanho das gotas de líquido e conseqüentemente o tamanho de gotículas produzidas pelo bico de aspersão, influencia no tamanho do grânulo formado. Os detalhes do mecanismo de nucleação, desde a etapa de molhamento (ponte líquida) até a consolidação das partículas (ponte sólida) são mostrados na Figura 2.9.

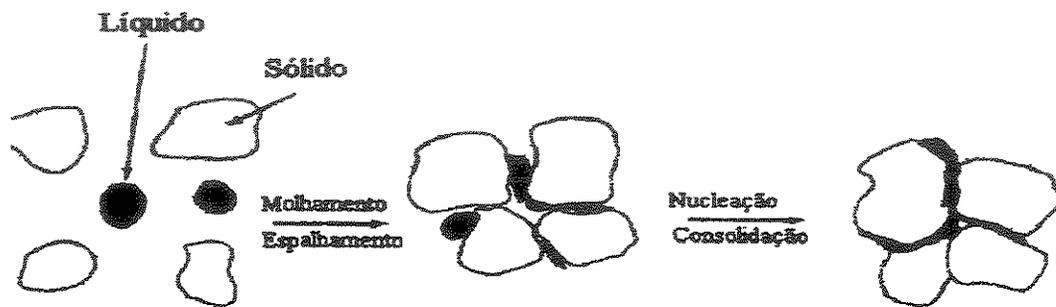


Figura 2.9 – Mecanismo de aglomeração por nucleação (KADAM, 1991).

Coalescência: O critério básico de adesão no mecanismo por coalescência é que dois sólidos colidem entre si, coalescem e a ligação resultante é mais forte que os efeitos combinados de todas as forças atuantes. O processo continua, causando aumento de tamanho por aglomeração.



Figura 2.10 – Mecanismo de aglomeração por coalescência (KADAM, 1991).

Crescimento: Este é o mecanismo convencional de crescimento por aglomeração. O fenômeno ocorre da seguinte maneira. Inicialmente, partículas são aderidas formando

aglomerados. Na seqüência, outras partículas se juntam ao aglomerado já formado, e assim o mesmo vai aumentando o tamanho. Durante este mecanismo de crescimento, pode ocorrer a produção de partículas menores por abrasão e/ou atrito entre as partículas e os aglomerados formados ou entre os próprios aglomerados. Todavia, o aumento de tamanho é o mecanismo dominante durante o processo. A Figura 2.11, mostra a seqüência do mecanismo.

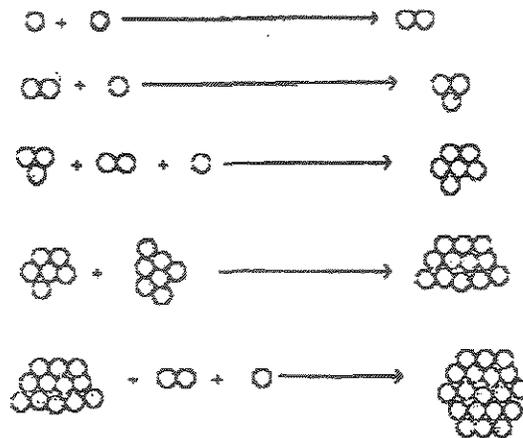


Figura 2.11 – Mecanismo de aglomeração por crescimento (KADAM, 1991).

Formação de camadas: O crescimento de partículas por formação de camadas ocorre em torno de um núcleo, no qual partículas menores colidem e aderem formando camadas concêntricas. O recobrimento de partículas é um exemplo deste tipo de crescimento na formação do filme. A figura 2.12 apresenta esquematicamente este mecanismo.

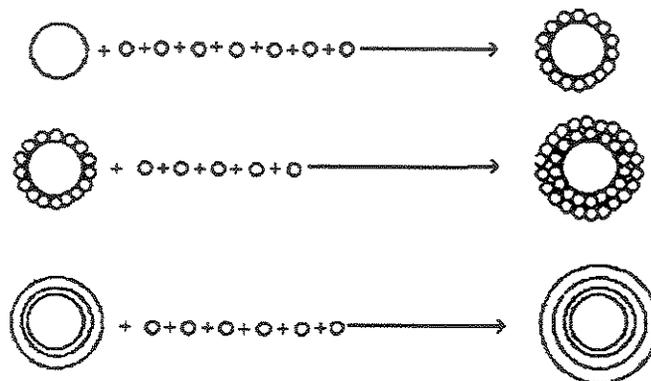


Figura 2.12 – Mecanismo de aglomeração por formação de camadas (KADAM, 1991).

2.5.1.2 – Aglomeração e forças interpartículas em leitos fluidodinamicamente ativos.

Um estudo resumido de casos de formação de aglomerados indesejáveis no processo de recobrimento de partículas em leitos móveis é apresentado a seguir, confirmando os principais parâmetros que comprometem o processo de recobrimento com a formação de aglomerados.

ILEY (1991) analisou o efeito do tamanho e da porosidade das partículas trabalhando com recobrimento em filme de partículas inorgânicas porosas e não porosas com diferentes tamanhos (560 e 490 μm), com polímero látex (30 % em massa), no processo Wurster. O autor observou que as partículas porosas apresentam maior tendência a formar aglomerados que as partículas não porosas. Na comparação dos resultados de qualidade do recobrimento obtidos por microscopia eletrônica de varredura, notou que as partículas porosas formaram filmes irregulares; isso se deve ao fato dos poros e a irregularidade da superfície dessas partículas reterem líquidos formando pontes e resultando em aglomerados de partículas. Com testes de liberação, por condutividade elétrica, obteve os perfis de liberação para partículas não porosas e porosas. Os perfis de liberação de partículas não porosas foram mais lentos que os obtidos para as partículas porosas, confirmando a importância da qualidade do recobrimento obtido no processo de liberação e justificando que a formação de aglomerados é indesejável no processo de recobrimento em filme. A penetração do material de recobrimento nos poros, das partículas porosas, por forças capilares contribuiu para ineficiência de secagem, com formação de pontes líquidas e, por consequência, o favorecimento de formação de aglomerados.

LINK e SCHLÜNDER (1997) trabalharam com recobrimento e granulação de partículas sólidas em um leito fluidizado, investigando a influência de parâmetros operacionais e fluidodinâmicos. Foi desenvolvido um equipamento experimental permitindo uma pesquisa mais detalhada dos mecanismos básicos pelos quais os grânulos são formados em processo de granulação e recobrimento. Ao recobrir partículas de alumina com uma suspensão aquosa de cloreto de sódio, lactose e cal hidratada em leito fluidizado, observaram que existe uma relação linear entre o crescimento da partícula e o número de eventos de recobrimento. A taxa de crescimento apresentou-se proporcional à umidade da partícula, passando por um máximo, e depois ocorre a queda da taxa e inicia-se a

aglomeração das partículas. A adição de um surfactante na solução ajuda reduzir a tensão superficial aumentando a molhabilidade melhorando o espalhamento das gotas sobre a partícula. A formação de aglomerados não foi observada quando utilizaram a suspensão com surfactante.

LITSTER e SARWONO (1996) estudaram experimentalmente a formação de aglomerados em um granulador fluidizado rotatório de 0,3 m de diâmetro. Esferas de vidro de vários tamanhos foram recobertas com parafina fundida. O efeito do tamanho das partículas (1,5 a 8,0 mm), da taxa de atomização do líquido (17 a 43 g/min) e da velocidade de rotação (20 a 40 rpm) sobre a fração de aglomerados formados foi investigado. A formação de aglomerados foi controlada pelas colisões entre os grânulos molhados na zona de aspersão. Esta formação apresentou-se fortemente dependente do tamanho da partícula, sendo que partículas menores resultaram na formação de aglomerados de 60 a 90 %, enquanto que as partículas maiores que 4 mm não formaram aglomerados. O aumento da taxa de atomização do ligante favoreceu a formação de aglomerados, sendo possível determinar o ponto de transição do regime de granulação para aglomeração dependente do tamanho inicial da partícula. Este ponto de transição, definido entre a alta fração de aglomerados obtidos (regime não inercial) e a não formação de aglomerados (regime de recobrimento) é fortemente dependente do aumento da taxa de atomização do líquido, mas com dependência fraca da velocidade de rotação. O aumento na velocidade de rotação desfavorece a formação de aglomerados, ou seja, diminui a porcentagem formada devido a maior circulação dos sólidos e, por conseqüência, melhor taxa de secagem. Entretanto, este efeito apresentou-se pequeno em relação à taxa de atomização do ligante.

BECHER e SCHLÜNDER (1996), ao estudarem o mecanismo de crescimento de grânulos em leito fluidizado, fazendo experimentos de granulação com uma suspensão de carbonato de cálcio (CaCO_3), observaram que existe uma quantidade limite para alimentação da solução de recobrimento, sendo que acima desta quantidade a aglomeração não pode ser controlada. As gotas que saem do bico atomizador são coletadas pelas partículas, formando várias camadas de líquido, secando em seguida. Com a colisão das partículas ainda molhadas ocorrerá a formação de pontes líquidas, ocorrendo de qualquer forma o crescimento. O início da aglomeração ocorre somente se a força de ligação induzida pela ponte líquida entre as partículas for mais elevada do que as forças de

separação causadas pelas colisões ou pela força peso, levando à formação de grandes aglomerados e a defluidização (colapso) do leito de partículas.

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

PASSOS *et. al.* (1988), ao analisarem o comportamento de partículas secas e molhadas em leitos de jorro e jorro-fluidizado bidimensionais, obtiveram aglomeração indesejada de partículas molhadas para vazões altas de líquido.

SCHNEIDER E BRIDGWATER (1993) estudaram a estabilidade de leitos de jorro molhado, utilizado no processo de granulação, recobrimento e secagem de pastas, utilizando quatro tipos de partículas de diâmetros entre 2 a 5 mm, com água e glicerol. Ao analisarem o efeito do líquido injetado no leito de jorro na altura da fonte constataram que a fase líquida pode exercer considerável influência no comportamento fluidodinâmico do leito de jorro, causando um completo colapso do jorro, devido à coesão de partículas. O fator contribuinte para o aumento da significância de forças coesivas de partículas em processo de recobrimento ou granulação é a diminuição desses líquidos no leito devido a secagem. A quantidade máxima de líquido injetada está relacionada à razão entre as forças inerciais da partícula e as forças viscosas ou de coesão do filme líquido sobre as partículas, favorecendo a formação de pontes líquidas entre as partículas que podem vir a solidificar, formando aglomerados.

PASSOS e MUJUMDAR (2000) realizaram um estudo sobre o efeito das forças coesivas em leito de jorro e fluidizado de partículas molhadas. Estes leitos são utilizados para o processamento de materiais em pastas, incluindo a produção de pós-finos através da secagem de suspensões em leitos de partículas inertes, recobrimento de comprimidos ou “pellets”, granulação, etc. Nestes processos, a operação do leito móvel é mais complexa devido ao desenvolvimento de forças coesivas resultantes de pontes líquidas entre as partículas. Estas forças podem afetar o fluxo de gás no leito, levando à aglomeração descontrolada de partículas e a um contato gás-sólido ruim. As principais variáveis que

afetam a taxa de secagem de pastas em leitos de partículas inertes são a temperatura e a taxa do ar de circulação das partículas. Ambas variáveis governam a transferência de calor e a taxa de circulação dos sólidos, respectivamente, sendo necessário um ajuste adequado para não ocorrer a aglomeração.

DEWETTINCK *et al.* (1998) analisaram a tendência à aglomeração no recobrimento de partículas (esferas de vidro de diâmetro 365 μm e densidade de 2496 kg/m^3), com soluções aquosas de LBG (goma de feijão), CMC (carboximetil celulose) e ALG (alginato de sódio) em um leito fluidizado tipo Glatt. Foram utilizadas esferas de vidro para garantir que os efeitos observados nos experimentos fossem atribuídos apenas ao recobrimento aplicado. Para avaliar a operação de recobrimento e a aglomeração foi proposto o cálculo da eficiência de evaporação, que, para um processo de secagem convectivo, é dado pela equação:

$$E = \frac{Y_2 - Y_1}{Y_s - Y_1} \quad (2.9)$$

em que : Y_1 - umidade absoluta do ar na entrada do leito, kg/kg

Y_2 - umidade absoluta do ar na saída do leito, kg/kg

Y_s - umidade absoluta do ar na saturação, kg/kg

O valor limite observado ficou em torno de 0,47 e quando excedia muito este valor, o resultado era um completo colapso do leito, acompanhado de uma cobertura das paredes do leito e do bico de atomização por partículas aglomeradas. Os autores verificaram que a tendência à aglomeração ocorre devido à umidade do filme durante as etapas de recobrimento e não devido às propriedades da solução. Foram analisadas as propriedades reológicas da solução de recobrimento. Para o recobrimento com LBG e CMC, os resultados são similares, apresentando uma superfície mais uniforme, de modo que as imperfeições são desprezíveis. Para as soluções de recobrimento contendo ALG e CAR (carragena), as características relacionadas à higroscopicidade e reologia são similares, no entanto, a solução de CAR permite uma alta taxa de aspersão antes que o colapso do leito ocorra. Este fenômeno também pode influenciar a magnitude das imperfeições na superfície recoberta.

Com objetivo de inibir a aglomeração de partículas pelo rápido crescimento durante recobrimento de celulose cristalina (Celphere, 282 μm), YUASA *et al.* (1997) acrescentaram NaCl a diferentes concentrações (0,5 a 8 % em peso) às soluções aquosas de HPC (hidroxipropil celulose) e HPMC (hidroxipropil metil celulose). Para o processo de recobrimento, utilizou-se um leito fluidizado com inserção de um bico atomizador no topo do leito. Através de imagens de microscopia eletrônica, observou-se que com adição de NaCl a rugosidade da superfície das partículas aumentou. FUKUMORI *et al.* (1993) relataram que a inibição da aglomeração se deve ao aumento da rugosidade na superfície das partículas recobertas, devido à cristalização pela adição de NaCl. Todavia, as partículas recobertas sem adição de NaCl também apresentaram rugosidade em sua superfície, assim entende-se, neste trabalho, que a inibição de aglomeração deve-se a outros fatores. Para investigar este fato, foram analisados alguns efeitos:

1. Efeito da concentração de NaCl na viscosidade e transmitância da solução aquosa de HPC a 30 °C. Foi observado que para uma concentração de NaCl superior a 6 %, a viscosidade e a transmitância da solução de recobrimento diminuíram abruptamente;
2. Razão entre a temperatura e viscosidade de uma solução aquosa de 6 % em peso de HPC com e sem adição de NaCl. Observou-se que a viscosidade só começa a diminuir bruscamente, para a solução isenta de NaCl, a partir de 50 °C, enquanto que para a solução com adição de NaCl a viscosidade diminui a temperaturas bem inferiores, à medida que aumenta-se a concentração de NaCl;
3. Efeito da concentração de NaCl no diâmetro médio da partícula recoberta, durante o recobrimento a diferentes temperaturas de entrada de ar: 70, 80 e 90 °C. Observou-se que sem adição de NaCl, as partículas aumentaram de tamanho, de 300 para 900 μm , enquanto que para a adição de NaCl de 0,5 e 5 o diâmetro médio das partículas recobertas diminui significativamente com o aumento da concentração e temperatura, atingindo um valor limite observado de 450 μm , para a concentração de 5 % de NaCl, independente da temperatura.

Dando continuidade ao estudo sobre inibição de aglomeração no recobrimento de partículas em leito fluidizado, YUASA *et al.* (1999) avaliaram o efeito do tamanho da nuvem de aspersão, na redução da aglomeração, bem como o efeito de NaCl no tamanho

desta nuvem. Foram recobertas partículas de CP (celphere) com HPMC (hidroxipropil metil celulose) e aditivo NaCl, em leito fluidizado. Para medir o tamanho da nuvem de aspersão, utilizou-se um transmissor e um processador de sinais que atravessava o jato de aspersão. As imagens foram capturadas por um processador e enviadas a um microcomputador. Este jato era variado através do deslocamento da posição do bico de atomização de 4, 8, 12 e 18 cm em relação ao leito de partículas. Foi observado que para uma altura em torno de 20 cm, o jato de aspersão adere-se às paredes do leito. Durante cada experimento, foram coletadas amostras de 5 g em intervalos de 30 min. Os autores concluíram que o aumento do volume de ar de fluidização e da temperatura do ar de entrada inibe a formação de aglomeração das partículas por pontes líquidas no recobrimento em leito fluidizado. E que o efeito da concentração de NaCl no tamanho da névoa no leito fluidizado foi dificilmente observado, mas no revestimento observou-se um crescimento no grau de supressão da aglomeração com o aumento da concentração de NaCl na solução de recobrimento. Conseqüentemente a supressão da aglomeração está relacionada a uma redução na viscosidade da solução de recobrimento através da solubilidade pela adição de NaCl.

SAKAI e ATAÍDE (2000) analisaram o efeito das variáveis de processo na taxa de crescimento de partículas, fração mássica de aglomerados e eficiência média de recobrimento. Foram recobertas esferas de vidro de três diâmetros distintos: 0,5475; 0,2735 e 0,1630 mm, em leito fluidizado. As variáveis de processo analisadas foram: diâmetro médio das esferas, carga de partículas no leito e vazão de solução de recobrimento. Com base na cinética de crescimento e considerando que o recobrimento em leito fluidizado comporta-se como um sistema de mistura perfeita (VERLOOP *et al.*, 1968), o processo foi descrito matematicamente como um modelo de primeira ordem, através da equação integrada a seguir:

$$WC = 1 - \exp(-k.t_r) \quad (2.10)$$

onde: WC = taxa de crescimento

k = constante da taxa de crescimento, (min^{-1})

t_r = tempo de recobrimento, (min)

A eficiência do processo de recobrimento é definida como a razão entre a quantidade de sólidos depositada sobre as partículas pela quantidade de massa sólida de recobrimento atomizada em função do tempo (Equação 2.11).

$$\eta(\%) = \frac{(M_f - M_o)}{W_s \cdot C_s \cdot t_r} \cdot 100 \quad (2.11)$$

Após o tempo de processo de recobrimento determinou-se a taxa de aglomeração, como:

$$\text{Agl}(\%) = 100 \frac{M_{\text{agl}}}{M_i} \quad (2.12)$$

Os autores concluíram, neste trabalho, que:

- a eficiência média obtida apresentou valores acima de 80 %;
- o modelo linear de mistura perfeita descreve bem a cinética de crescimento de partículas (coeficiente de correlação > 0,97);
- os parâmetros analisados: cargas de esferas, descarga de solução de recobrimento e diâmetro das esferas, exerceram influência significativa na cinética de crescimento e na porcentagem de aglomerados;
- o percentual de aglomerados é bastante sensível à relação carga de partículas/vazão de suspensão de recobrimento.

SALEH *et al.* (2003) fizeram um estudo experimental e modelagem de recobrimento e aglomeração em leito fluidizado. Investigaram o efeito do tamanho de partículas como critério para o recobrimento, usaram areia como suporte com tamanho médio variando de 90-639 μm , como uma solução aquosa de NaCl como líquido de recobrimento. Observaram que a taxa de crescimento e a eficiência aumentam com a diminuição do tamanho das partículas. O crescimento é governado principalmente pela camada de partículas maiores que 200 μm , enquanto que, para partículas finas isto ocorre por aglomeração.

O entendimento do recobrimento em leito fluidizado depende do mecanismo que governa o crescimento das partículas, da estabilidade operacional e eficiência. No entanto, devido à complexidade do fenômeno, a influência das condições operacionais nestes critérios ainda não é bem entendida. Para predizer a evolução da distribuição do tamanho

das partículas no processo, um modelo matemático foi estabelecido usando um balanço de massa convencional em conjunto com uma equação de balanço populacional.

Os autores chegaram à conclusão que a taxa de crescimento e a eficiência diminuem com o aumento do tamanho das partículas. O crescimento é governado principalmente por camadas para partículas maiores que 200 μm , enquanto que para as partículas finas o mecanismo predominante é aglomeração. Para as partículas menores que 90 μm , a operação de recobrimento conduz a um crescimento incontrolável e o colapso do leito. No entanto, o recobrimento de finos pode ser realizado adicionando algumas partículas recobertas ($d_p \sim 450 \mu\text{m}$). Um modelo matemático baseado no conceito do balanço populacional foi estabelecido supondo que o recobrimento e a aglomeração são um fenômeno dependente do tamanho das partículas. A comparação entre os valores preditos e os resultados experimentais mostrou que a taxa da formação do aglomerado diminui seguindo uma lei de potência.

HEMATI *et al.*(2003) trabalhando com recobrimento e granulação em leito fluidizado, estudaram a influência das variáveis relacionadas de processo e propriedades físico-químicas na cinética de crescimento. Investigaram os seguintes fenômenos que ocorrem durante o aumento do tamanho dos grânulos no leito fluidizado:

- a) o efeito das variáveis de processo;
- b) influência da localização do atomizador com relação a distribuição do ar,
- c) o comportamento hidrodinâmico e térmico do leito fluidizado na presença de uma pulverização submersa;
- d) influência da velocidade do ar de atomização;
- e) influência da vazão da solução na taxa da vazão de atomização constante do ar;
- f) influência da viscosidade;
- g) influência da tensão superficial e ângulo de contato;
- h) influencia do tamanho da partícula

As variáveis de processo mais importantes são: a posição do bico atomizador, a velocidade do ar de fluidização, temperatura do ar de entrada, taxa do fluxo de ar do bico

de atomização, e a temperatura do leito. Estes parâmetros de processo são interdependentes e podem produzir um produto desejável se esta interdependência for entendida.

Quanto a influência da localização do bico atomizador, esta análise foi feita durante o recobrimento de partículas de areia no leito fluidizado com uma solução de NaCl. A solução salina é introduzida em três diferentes alturas 0,13, 0,23, e 0,33 m, acima da placa distribuidora os autores observaram que:

- A altura do bico atomizador tem uma influência significativa no crescimento da partícula, especificamente quando essa altura é maior que 0,23 m o que acarreta uma redução na taxa de crescimento de 14 % para 8 % no fim do processo.
- A taxa de recobrimento e a eficiência diminuem variando entre 91,4 % e 58 % quando a altura do bico atomizador é aumentada de 0,13 para 0,33 m. Isto pode ser explicado pelo fato que, aumentando a distância entre o atomizador e a superfície do leito de partículas favorece tanto a secagem da aspersion quanto a molhabilidade da parede do leito.

O comportamento hidrodinamico do leito foi analisado na presença da pulverização submersa num leito constituído de partículas de areia (100 e 250 μm de diâmetro inicial), com a temperatura mantida em 100 °C. Os perfis da pressão estática mostraram que a atomização não afeta o comportamento hidrodinamico do leito de partículas, a zona influenciada do leito era apenas uma região restrita, situada logo abaixo do bico atomizador de modo que o comprimento da penetração do spray era sempre menos que 30 mm. Com relação ao perfil de temperatura, os resultados revelaram a existência de regiões de baixa temperatura perto do bico atomizador onde a maior parte da evaporação ocorre. Esta região é considerada como a zona úmida de evaporação no leito. Foi observado que na faixa de variação das condições operacionais estudadas, o volume de umidade na zona de evaporação varia entre 0,5 a 3 % do volume total da camada fluidizada e o volume dessa zona aumenta: lentamente com o aumento da vazão de ar de atomização, com a diminuição da velocidade em excesso do ar de fluidização ($U-U_{mf}$) e com aumento da taxa da vazão de pulverização.

A velocidade do ar de fluidização afeta a instabilidade da operação e o mecanismo de crescimento, para uma temperatura e uma taxa de vazão da solução ligante fixa no leito, sendo um dos parâmetros mais importantes. Estes parâmetros determinam também a

capacidade de secagem. Observaram que uma vazão mais elevada produzirá uma evaporação rápida favorecendo o mecanismo de recobrimento ou a formação de grânulos menores e friáveis. Uma taxa de fluxo mais baixa realçará grânulos maiores, compactos, e mais densos. Além disso, o comportamento hidrodinâmico do leito fluidizado e a mistura das partículas são fortes funções da velocidade do ar de fluidização. Uma escolha apropriada deste parâmetro é essencial para evitar aglomeração indesejada e manter uma operação estável por períodos longos. Observaram também que a defluidização está caracterizada por uma rápida diminuição na queda de pressão, porque uma grande quantidade de ar de fluidização atravessa o leito empacotado por uma região preferencial. E quanto mais baixa a velocidade do ar trabalhada mais rápida a defluidização ocorre.

A literatura apresenta diversos trabalhos sobre a influência das forças interpartículas na dinâmica de leitos ativos, principalmente a força devido à ponte líquida que ocorre quando a terceira fase (a líquida) é adicionada ao leito de partículas. Os trabalhos se referem ao recobrimento de partículas ou secagem de pastas e suspensões em leito de jorro e fluidizado. No recobrimento de partículas, o início do processo acontece com o leito em boas condições de mistura e esse comportamento vai sendo comprometido à medida que a suspensão/solução de recobrimento é adicionada ao leito. Em muitos casos, dependendo das condições operacionais, principalmente vazão de suspensão e pressão de atomização, o leito é desfluidizado (colapso) ou a alimentação da suspensão de recobrimento passa a ser realizada de forma intermitente. No caso da secagem de pastas e suspensões, geralmente com operação em batelada, o leito sofre modificações importantes na sua estabilidade no momento inicial do processo. Alguns autores (MEDEIROS, 2001; SPITZNER NETO e FREIRE, 2000) analisaram este efeito através do cálculo aproximado do grau de saturação da polpa de frutas tropicais e ovo homogeneizado, respectivamente, em relação ao leito de partículas. O grau de saturação é calculado através da razão entre o volume de pasta ou suspensão adicionada ao leito e o volume de vazios no leito.

Vários autores (ARAI e SUGIYAMA, 1974; ARAI et al, 1980; D'AMORE et al, 1979; VANECEK et al, 1967) estudaram a influência do teor de umidade, tipo do material e diâmetro da partícula na fluidodinâmica de leitos fluidizados. Os materiais que facilmente absorvem água, que são materiais porosos e capilares porosos, não alteram as características de fluidização, mesmo quando possuem alto teor de umidade. Por exemplo, algumas resinas de troca iônica com 50 % de umidade, apresentam o mesmo desempenho

durante a fluidização quando comparadas com o material seco. Todavia, para outros materiais, como esferas de vidro ou areia, após atingir um certo teor de umidade começam a surgir dificuldades em atingir o regime de fluidização, aumentando significativamente a velocidade na condição de mínima fluidização, juntamente com a não uniformidade da estrutura do leito e a formação de canais. Isso ocorre para materiais que não absorvem água, onde se observa um aumento na velocidade de mínima fluidização para baixos teores de umidade. Esse fenômeno, para os dois tipos de materiais, pode ser observado na Figura 2.13, para esferas de vidro e argila.

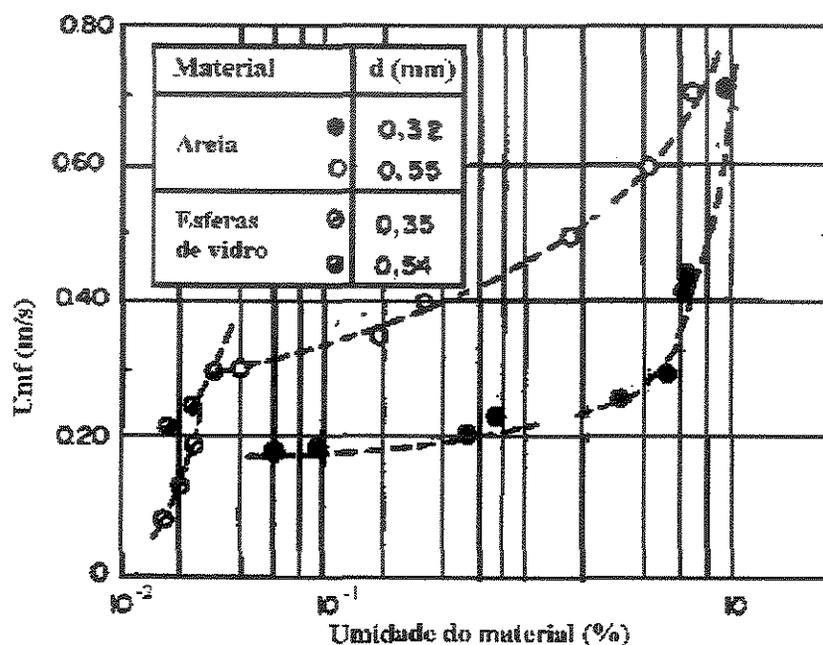


Figura 2.13 – Influência do teor de umidade do material na velocidade de mínima fluidização de esferas de vidro e areia (STRUMILLO e KUDRA, 1986).

Para a maioria das aplicações de secagem, a maior dificuldade em iniciar o regime de fluidização corresponde a um determinado intervalo de umidade que corresponde à umidade livre, período de taxa de secagem constante. O teor de umidade já não mais interfere na fluidodinâmica do leito para taxa de secagem decrescente.

A Figura 2.13 mostra o aumento na velocidade de mínima fluidização causada pelo aumento do teor de umidade do material.

SEVILLE e CLIFT (1984) estudaram o efeito da adição de líquido não-volátil durante o recobrimento de um determinado material do grupo B segundo a classificação de Geldart (1986), utilizando um leito fluidizado. Observou-se um aumento da coesividade deste material, dificultando a fluidização. Um aumento da porosidade do leito e da velocidade na condição de mínima fluidização foi observado para a faixa estudada. Foram fluidizadas partículas de vidro de densidade igual a 2950 kg/m^3 , em um leito de 15,2 cm de diâmetro com distribuidor em placa perfurada. A adição de uma pequena quantidade de líquido não volátil em material do grupo B mostra o comportamento fluidodinâmico do material na faixa de transição do grupo A para C.

RHODES *et al.* (2001) verificaram a influência das forças interpartículas nas características de fluidização de partículas dos grupos C, A, B e D, segundo classificação de Geldart. Para fazer este estudo, foi desenvolvido um software de simulação baseado no método de elementos finito (DEM). Como considerações do modelo, tem-se que:

- o movimento do gás de fluidização é descrito pela equação integrada de Navier Stokes;
- o movimento de uma partícula é descrito pela equação de Newton do movimento;
- as colisões partícula-partícula e parede-partícula foram simuladas pela Lei de Hooke;
- as interações entre partículas e gás de fluidização foram descritas considerando duas hipóteses: 1) quando a porosidade do leito era menor que 0,8 utilizou-se a equação de Ergun para leito empacotado; 2) quando a porosidade do leito era maior que 0,8, utilizou-se uma equação modificada da resistência do fluido sobre uma única partícula.

Com objetivo de estudar o efeito geral das forças interpartículas (F_{int}) foi necessário utilizar uma força conhecida e de fácil ajuste – peso flutuante de uma partícula. Assim, foi possível variar a força interpartícula com o incremento da constante (ω):

$$F_{\text{int}} = \frac{\omega \cdot \pi \cdot d_p^3 \cdot g (\rho_p - \rho_g)}{6} \quad (2.13)$$

Os parâmetros de entrada do programa são: o leito fluidizado possui 8 cm de largura e 20 cm de altura; 4000 partículas de diâmetro igual a 1 mm e densidade igual a

2650 kg/m³ foram fluidizadas por fluxo de ar: o intervalo de tempo, para o qual a velocidade do gás permanece constante, foi $\Delta t = 1,5$ s.

O comportamento do leito durante o tempo de simulação foi identificado em três instantes, de acordo com a movimentação das partículas:

- TIPO I – leito fixo ($t = 0$ a 9,5s ou $U = 0$ a 0,778 m/s);
- TIPO II – pequenas flutuações do leito com rearranjo de partículas ($t = 9,5$ a 15,5 s ou $U = 0,778$ a 0,858 m/s);
- TIPO III – flutuações na queda de pressão do leito e aumento da velocidade do gás: formação, coalescência e erupção de bolhas ($t > 15,5$ s ou $U > 0,858$ m/s).

A variação de U_B/U_{mf} em função de ω para partículas de diferentes densidades foi verificada e através do resultado, mostrou-se que U_B/U_{mf} aumenta com o aumento de ω e não apresenta variação para partículas de diferentes densidades. Observou-se, também, que a transição do comportamento de partículas do grupo B para o A ocorre quando ω se aproxima de 1.

As principais conclusões do trabalho foram:

- a velocidade de mínima fluidização não é sensível a variações de forças interpartículas, ou seja, não varia com ω . Por outro lado, a velocidade mínima de bolha aumenta com o aumento das forças interpartículas, para as partículas dos grupos A e B;
- a transição do comportamento das partículas do grupo B para o grupo A, ocorre quando a força interpartícula é aproximadamente igual ao peso flutuante de uma única partícula.

PASSOS e MASSARANI (2000) propuseram uma metodologia de análise para descrever as forças coesivas entre partículas utilizando leitos fluidizados. Foram fluidizadas partículas de vidro, do grupo B de Geldart, numa coluna construída em acrílico com as seguintes dimensões: 70 cm de altura e diâmetro de 7,6 cm, acoplada a um distribuidor de ar em forma cônica, empacotado com esferas de aço (5 mm). Para induzir o efeito coesivo no leito de partículas de vidro, foram utilizados três líquidos diferentes: água, nujol e glicerina. Os ensaios foram realizados com uma carga fixa de partículas de 762 g, com

adição de líquido variando de 0 a 20 mL.

As observações feitas sobre o comportamento destes leitos, na condição de fluidização incipiente foram:

- para os leitos com nujol (0 a 0,5 mL adicionado), após ΔP_{\max} ocorre o deslizamento do leito na parede da coluna, evidenciando o rompimento das forças de adesão entre as partículas e a parede. Em seguida, o leito quebra-se e as partículas caem em forma de chuva, significando a quebra das forças de coesão;
- para alimentação de 2 mL de nujol, o leito desliza na parede, sem movimento das partículas e estas mantêm-se coesas e não há fluidização;
- para alimentação de glicerina igual ou maior a 0,4 mL, o leito desliza e cai na base da coluna, partindo-se; regiões desfluidizadas acima do distribuidor ocorrem; verifica-se histerese nas curvas de queda de pressão em função da velocidade, aumentando com o aumento da alimentação de líquido;
- para nujol – observou-se regime mais estável com dados mais reprodutíveis;
- para glicerina – fluidização difícil, formação de caminhos preferenciais para o ar e expansão considerável do leito após a ruptura.

Os autores concluíram que embora os resultados sejam preliminares, os líquidos lubrificantes (como nujol) facilitam o deslizamento do leito sobre as paredes da coluna, mas não necessariamente, reduzindo o efeito da coesão entre partículas.

A necessidade de entender a defluidização de um leito devido à presença de líquido na superfície das partículas foi investigada por McLAUGHLIN e RHODES (2001) utilizando partículas inertes de diâmetro igual 1,09 mm e densidade 2,59 g/cm³. O leito utilizado para fluidizar as partículas possui 15 cm de diâmetro, distribuidor de ar com furos de 1 mm em arranjo triangular. Os ensaios foram realizados com a introdução de um líquido newtoniano e não-volátil a diferentes viscosidades e tensão superficial. Estudou-se o comportamento do leito, segundo a fluidização de partículas do grupo B de Geldart, principalmente através de observações visuais e da queda de pressão em função da velocidade superficial do ar no leito. Antes da adição de líquido, a fluidização do sistema apresentou comportamento do grupo B de Geldart e esta condição serviu para efeito de comparação para os outros estágios, ao longo dos ensaios. O incremento da adição de

líquido resultou na transição do comportamento do grupo B para o grupo A de Geldart e eventualmente para o grupo C.

O resultado principal relaciona a mudança no comportamento de um leito de partículas pela adição de líquido a diferentes viscosidades. A transição de um grupo para outro (Geldart) foi avaliada por λ (razão entre a força interpartícula e a força de arraste do fluido). A força interpartícula, devido à ponte líquida é expressa pela soma das forças viscosas e tensão superficial, enquanto a força de arraste do fluido é expressa pelo peso flutuante de uma única partícula.

$0,6 < \lambda_{AC} < 1,07$ – mudança no comportamento do leito do grupo A para o C.

$0,02 < \lambda_{BA} < 0,06$ – mudança no comportamento do leito do grupo B para o A.

O resultado geral é mostrado na Figura 2.14 através do efeito da viscosidade do líquido adicionado ao leito em função do volume de líquido adicionado (expresso pela razão entre o volume de líquido adicionado e o volume de sólido no leito, em porcentagem).

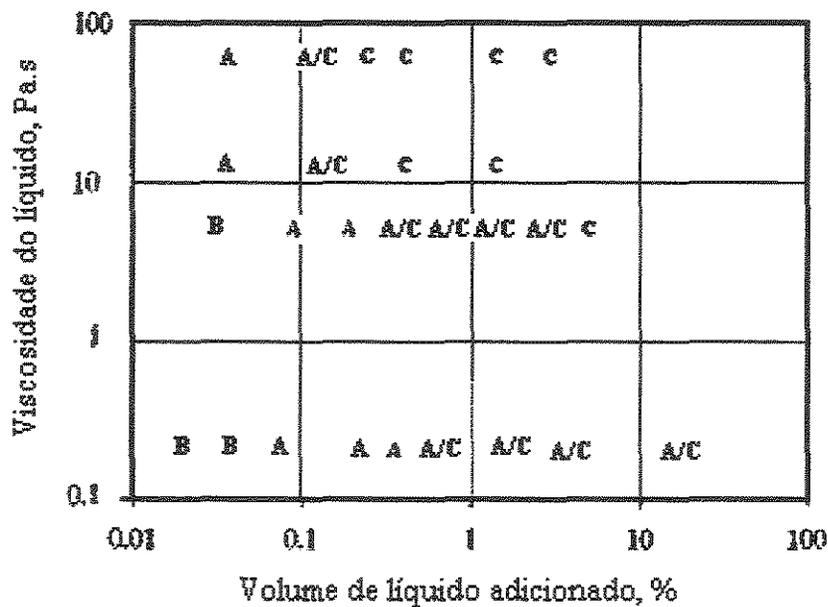


Figura 2.14 – Efeito da viscosidade e do volume de líquido adicionado no comportamento de um leito, segundo Geldart (McLAUGHLIN e RHODES, 2001).

PONT *et al.* (2001) investigaram os efeitos das propriedades físico-químicas como viscosidade e molhamento do líquido de granulação na superfície das partículas sólidas, na cinética de granulação em leito fluidizado. Foram realizados ensaios de granulação em bateladas de 2 kg com partículas de areia ($d_p = 100 \mu\text{m}$) e esferas de vidro ($d_p = 95$ e $500 \mu\text{m}$). A suspensão de granulação é composta de carboximetil metil celulose (CMC) a 1, 2 e 3 % em peso, para fazer o estudo da viscosidade da suspensão entre 16 e 185 cP. As partículas foram fluidizadas de acordo com as seguintes condições operacionais: temperatura do leito igual a $50 \text{ }^\circ\text{C}$; velocidade de fluidização ($U - U_{mf}$) igual a 19 cm/s ; vazão do ar de fluidização e do ar de atomização foram mantidas constantes em $2,6 \text{ g/min}$ e $0,64 \text{ m}^3/\text{h}$, respectivamente. O efeito da tensão superficial entre $0,072$ e $0,033 \text{ N/m}$ é investigado pela adição de surfactante à suspensão contendo 1 % de CMC em peso. Os resultados indicam que o crescimento de aglomerados é favorecido quando a tensão superficial aumenta e o ângulo de contato diminui, enquanto a viscosidade da suspensão apresentou menor efeito que os parâmetros de interface. Os resultados mostram que as forças dominantes no processo de granulação são as forças por capilaridade.

Quando uma suspensão é pulverizada sobre um leito fluidizado contendo partículas hidrofóbicas, grande parte da suspensão é elutriada e coletada por um ciclone na forma de pó, mostrando que a secagem da suspensão ocorre a baixa temperatura. Este resultado indica que a atomização da suspensão utilizada neste trabalho sobre partículas sólidas, possui fraca característica de molhamento e o processo pode ser usado para secagem de suspensões termosensíveis.

Segundo SEVILLE *et al.* (2000), a adição de camadas finas de líquido a um leito fluidizado faz com que as partículas fiquem mais coesivas, podendo ser observado, na Figura 2.15, a força líquida máxima da ponte que pode igualar o peso da partícula, para partículas até $100 \mu\text{m}$. Como consequência deste comportamento pode ocorrer o aumento da porosidade estabelecida do leito na mínima fluidização (SEVILLE *et al.*, 1987; SEVILLE e CLIFT, 1984), aumentando assim a velocidade de mínima fluidização. O efeito coesivo estabiliza uma estrutura de uma porosidade mais elevada. Este primeiro estudo mostra também que a adição de uma quantidade pequena do líquido é suficiente para causar uma separação entre os pontos da mínima fluidização e de mínimo borbulhamento, com uma região estável da expansão entre eles.

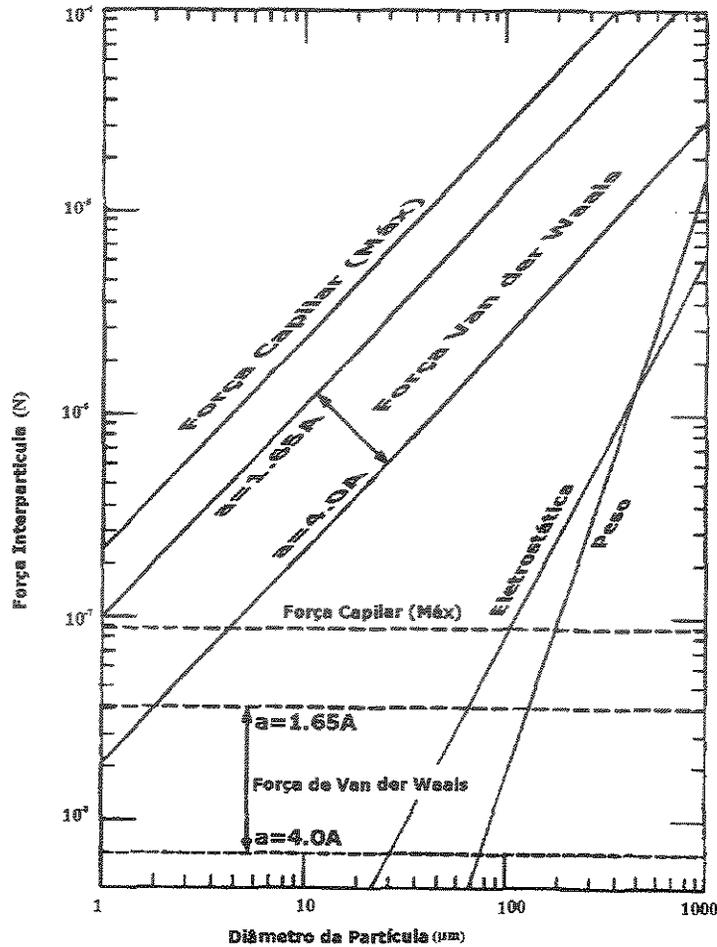


Figura. 2.15 - Comparação das forças interpartícula, com o diâmetro da partícula (as linhas tracejadas indicam o contato com o plano da superfície rugosa) (SEVILLE *et al.* (1997)).

WILLETT (1999), examinou o efeito do recobrimento de esferas de vidro com óleo não volátil na fluidização para os casos de volume de líquido constante no leito e para um aumento linear do volume de líquido, o último simula as condições de um processo de aglomeração, por exemplo. Em ambos os casos, o movimento da partícula foi monitorado seguindo uma única partícula do traçador radioativo usando a técnica da Emissão do Pósitron de Partícula (PEPT; PARKER *et al.* (1993)). Esta técnica permite que uma partícula, representativa da massa total de partículas (neste caso idêntica) seja monitorada nas velocidades de até alguns metros por segundo, localizando a posição da ordem de 50 vezes por segundo. Sucessivas posições podem ser usadas para obter as velocidades das partículas, usando uma variedade de algoritmos simples que permitem a localização de

erros da leitura. Neste caso, WILLETT, usou um tempo de 2 minutos de processo para obter uma média do movimento das partículas.

CAPÍTULO 3

MATERIAIS E MÉTODOS

3 – Materiais

3.1- Material a ser recoberto

O material utilizado como excipiente no processo de recobrimento é composto de partículas sem princípio ativo de celulose microcristalina – MICROCEL, com a faixa de diâmetro de grânulos, entre 300 a 420 μm . Essas partículas foram recobertas, por atomização da suspensão polimérica, em leito fluidizado e em escala de laboratório. Este material foi utilizado por SILVA (2003) e quando seco apresentou uma boa fluidização. A celulose microcristalina é apresentada comercialmente de várias formas de acordo com sua distribuição granulométrica. Neste trabalho, foi utilizado o tipo MC-500, adquirida da Blanver Farmoquímica LTDA, na forma de pó fino, branco, inodoro, fibroso, insolúvel em água e que apresenta as seguintes especificações, mostradas na Tabela 3.1.

Tabela 3.1 – Características da MICROCEL (SILVA, 2003).

Tipo	ρ_{ap} g/cm ³	ρ_s g/cm ³	\bar{d}_p μm
MC - 500	0,97	1,55	360

Realizou-se testes preliminares, incluindo ensaios fluidodinâmicos e de recobrimento, com o objetivo de verificar o comportamento do material, bem como estabelecer faixas experimentais. Nestes ensaios foram utilizadas partículas de MICROCEL do tipo MC – 500, caracterizadas e separadas em relação à distribuição granulométrica e diâmetro médio de partícula para a faixa de tamanho especificada (300 a 420 μm). Para os testes preliminares de recobrimento, foi feita uma análise da distribuição granulométrica por peneiras antes e após o recobrimento.

3.1.1 – Suspensão de recobrimento

As partículas são recobertas por atomização da suspensão polimérica, em leito fluidizado. A suspensão polimérica utilizada, à base de Eudragit® contém 12 % de sólidos em suspensão. A Tabela 3.2 apresenta a formulação desta suspensão.

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

Regentes	(%) em massa
Eudragit L30-D55	16,7
PEG 6000	0,75
Talco	2,75
Estearato de magnésio	1,00
Dióxido de titânio	1,40
Corante	0,60
Trietil citrato	0,50
Água	76,30

Esta suspensão foi usada no trabalho de SILVA (2003) com base nos resultados encontrados por DONIDA (2000), que trabalhando com a mesma formulação no recobrimento polimérico de uréia, obteve a formação de um filme uniforme e liso. Cada componente tem uma função específica na suspensão de recobrimento, como se segue: o polietileno glicol – PEG 6000 e o trietil citrato são plastificantes e têm a finalidade de dar flexibilidade à película, para que suporte melhor as tensões mecânicas; o talco e o estearato de magnésio têm a função de agentes de separação e alisamento, reduzindo a aglutinação da película ao secarem e produzindo uma superfície lisa. O estearato de magnésio é responsável pela diminuição da tensão superficial da suspensão, facilita o espalhamento da mesma sobre a superfície da partícula e sobre a camada do filme seco sobre a partícula; o dióxido de titânio é um opacificante, fornecendo ao revestimento uma coloração uniforme, impedindo que a superfície do núcleo seja visualizada, principalmente quando se trabalha com partículas de coloração escura; o corante é usado para proporcionar cor e boa

aparência às partículas recobertas, e, principalmente nos testes de microscopia, para melhorar a visualização e identificar os defeitos na película formada. O EUDRAGIT® tem aproximadamente 20 anos no mercado. São copolímeros de ácidos metacrílico, aminoetilmetacrilatos e ésteres neutros de ácidos acrílicos e metacrílicos. As propriedades de permeabilidade e solubilidade dependem da quantidade de grupos ácidos, básicos e hidrofílicos presentes. Podem ser utilizados com solventes orgânicos ou em dispersões aquosas. Os polímeros EUDRAGIT podem ser aplicados em todas as formas de dosagem sólida: comprimidos, cápsulas e microgrânulos. Este polímero pode ser usado também na fabricação de *pellets*, grânulos e comprimidos para liberação constante. Os polímeros são processados na forma de solução em solvente orgânico (álcool ou acetona) como misturas de soluções orgânicas em água pura ou água e látex.

3.2 – Equipamento experimental

O equipamento experimental utilizado no processo de recobrimento foi projetado e construído por SILVA (2002) e é mostrado na Figura 3.1. O leito consta de uma coluna cilíndrica, construída em acrílico, com 14 cm de diâmetro interno e 60 cm de altura, contendo uma câmara *plenum* (9) de 20 cm de altura, na parte inferior do leito, antes da placa distribuidora (10). O ar de fluidização é fornecido por um compressor (1) e aquecido por um conjunto de quatro resistências (7); a temperatura do ar é controlada por um sistema controlados liga-e-desliga acoplado a um termopar (16); a vazão do ar é controlada por uma válvula gaveta (3) e medida por uma placa de orifício (5) acoplada a um manômetro diferencial em U (17). Essa linha ainda possui uma tomada de pressão estática (4) acoplada a um manômetro em U e um leito de sílica para controlar a umidade do ar de entrada no leito (6); um agitador magnético mantém a suspensão de recobrimento sob agitação (14); a suspensão de recobrimento é transportada por uma bomba peristáltica (15) até o bico atomizador (11); uma linha de ar comprimido (18) fornece ar ao bico atomizador, sendo a vazão controlada por uma válvula que possui um manômetro de Bourdon (19) para medida também da pressão; amostras de partículas são retiradas do leito durante o processo de recobrimento por um coletor tipo seringa (12). Partículas arrastadas são separadas no ciclone (13).

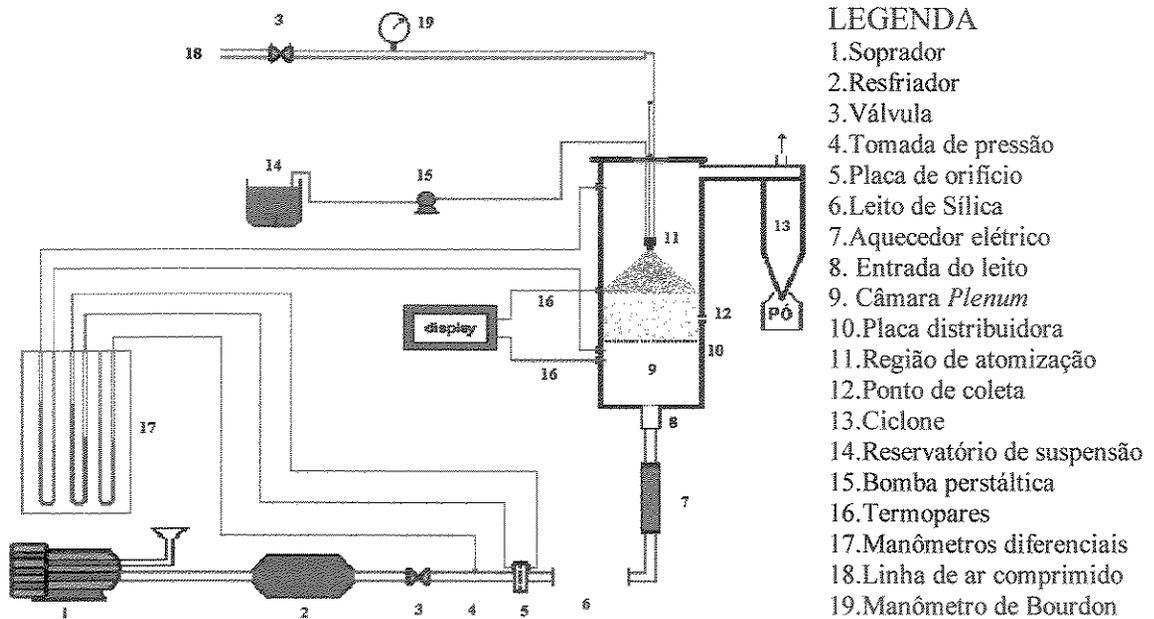


Figura 3.1 – Esquema do equipamento experimental, SILVA (2000).

A placa de distribuição de gás, construída em aço inox, foi acoplada ao leito acima da câmara *plenum*. A placa perfurada apresenta orifícios de 1 mm de diâmetro, em arranjo triangular, fornecendo uma área perfurada que representa 5 % da área total da placa. Os detalhes são mostrados na Figura 3.2. A equação utilizada para o cálculo do número de furos, foi baseada em GELDART e BAEYENS (1985). À placa distribuidora foi colada uma tela em aço inox com abertura de 0,106 mm para suportar as partículas de MICROCEL.

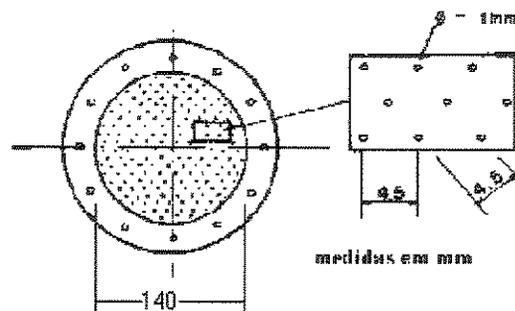


Figura 3.2 – Diagrama esquemático da placa distribuidora de ar.

O leito fluidizado, cujos detalhes de projeto são mostrados na Figura 3.3, possui uma abertura no topo do leito para encaixar o bico atomizador e duas flanges com 8 furos cada.

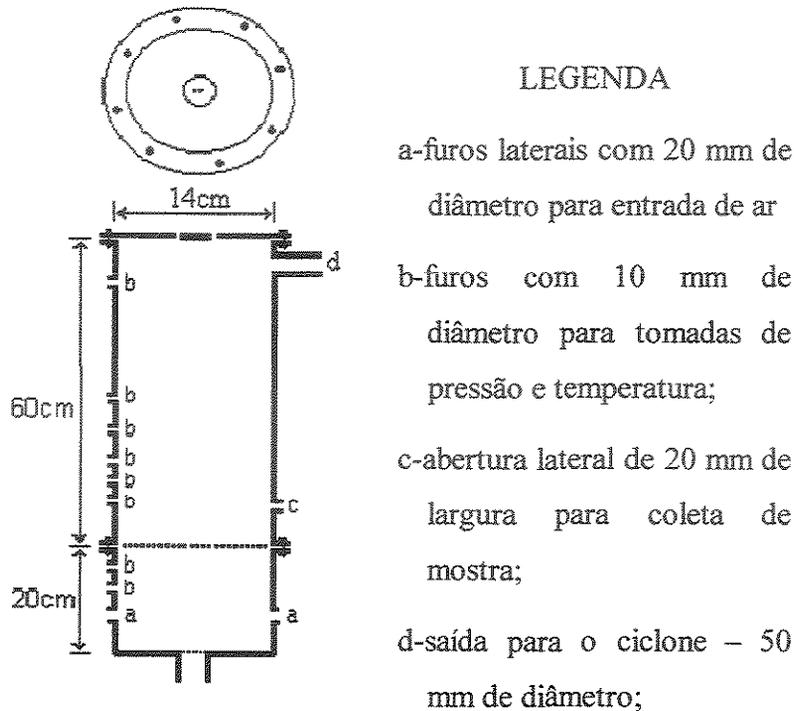


Figura 3.3 – Detalhes do leito fluidizado.

O leito foi construído com acrílico de 4 mm de espessura. As medidas de temperatura são realizadas na região da câmara *plenum* e em dois pontos distintos no leito de partículas: acima da placa distribuidora e na zona de aspersão. A entrada de ar no leito poderá ser realizada de duas maneiras: na base e nas laterais da câmara *plenum*. Inicialmente foi testada a entrada de ar no leito através da câmara *plenum* com entradas laterais. No entanto, a melhor distribuição de ar, que promoveu uma intensa movimentação do leito de sólidos, foi obtida utilizando a entrada de ar apenas pela base do leito.

Na lateral superior do leito foi acoplado um ciclone, de modelo Lapple, de 10 cm de diâmetro para coletar partículas de MICROCEL elutriadas, bem como gotículas de suspensão que secam antes de aderir às partículas de MICROCEL. Na lateral do leito, 10 cm acima da placa distribuidora, há uma abertura de 20 mm para coleta de amostras durante

os ensaios. A coleta é efetuada por um coletor tipo seringa que permanece acoplado ao leito para evitar perdas de material ao ser introduzido no mesmo durante os ensaios.

3.2.1 – Sistema de atomização

O ar de atomização é fornecido por um compressor de 10 cv, deslocamento de 1,1 m³/min e pressão máxima de 1206,58 kPa. A linha de ar de atomização tem diâmetro de uma polegada e a pressão de atomização é medida através de um manômetro de Bourdon com leitura em psi e em bar.

A suspensão de recobrimento é mantida em um recipiente de 2.000 ml com agitação magnética. O bombeamento da suspensão até o bico atomizador é feito por uma bomba peristáltica Masterflex®, modelo L/S 7523-20. A suspensão de recobrimento é conduzida até o bico por meio de um tubo de silicone de diâmetro interno igual a 1,6 mm, para fornecer a vazão necessária de operação. Esta suspensão ao entrar em contato com a corrente de ar comprimido é atomizada, produzindo um jato de aspersão de gotículas finamente divididas. Estas gotículas apresentam tamanhos variados, dependendo da pressão e vazão de ar utilizadas, como observado por SILVA e ROCHA (2002). A Tabela 3.3 mostra a variação no tamanho das gotículas para faixa de vazão e pressão em que esta bomba opera.

Tabela 3.3 – Variação no tamanho das gotículas de aspersão em função da vazão e pressão de atomização (Catálogo Spraying Systems nº 35).

$P_{at} = 68,95 \text{ kPa}$		$P_{at} = 296,47 \text{ kPa}$	
W (ml/min)	d_{gt} (mm)	W (ml/min)	d_{gt} (mm)
20	0,02	30	0,15
80	0,10	30.000	0,20

A Figura 3.4 apresenta o modelo do bico atomizador utilizado. O bico é de duplo fluido, alimentado com uma linha de ar comprimido e outra de suspensão, com mistura

interna e jato redondo (modelo SU11, adquirido da Spraying Systems, com capacidade de 5 a 61 mL/min e 68,95 a 399,89 Kpa para vazão e pressão, calibrada para água).

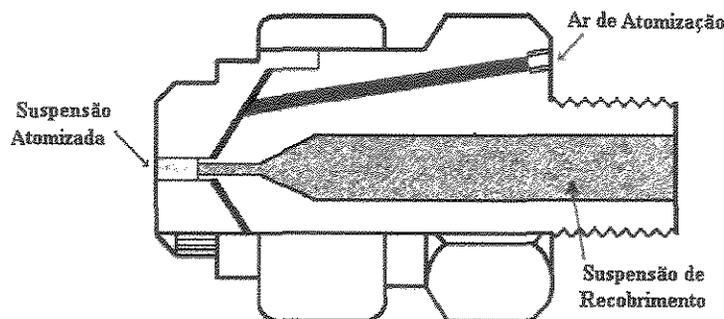


Figura 3.4 – Corte longitudinal de um bico atomizador a ar.

3.2.2 – Especificação da linha de ar de fluidização

O ar necessário para fluidizar as partículas de celulose é fornecido por um compressor radial, modelo CRE03, com 2 cv de potência. Antes da entrada do leito, foi montado um sistema de aquecimento de ar, por resistências. Para medir a vazão é utilizada na linha de ar de fluidização, uma placa de orifício em aço inox. A metodologia empregada para aferição da placa encontra-se descrita no item 3.3.2.

3.2.3 – Equipamentos periféricos e instrumentos

- Agitador de peneiras, marca Produtest, com marcador de tempo;
- Agitador magnético marca Fisatom, Modelo 753, potência 50 W;
- Agitador mecânico marca Fisatom, Modelo 713, potência 80 W;
- Aquecedor elétrico composto por 4 resistências, com potência total de 2800 W;
- Balança analítica marca Ada, precisão 0,0001 g;
- Balança técnica marca Ohaus, precisão de 0,1 g;
- Bomba peristáltica da Masterflex, Modelo L/S 7523-20, capacidade de 2 a 130 ml/min;
- Compressor radial, modelo CRE03, com 2 cv de potência;

- Controlador de temperatura, marca IOPE, precisão 0,1⁰C;
- Equipamento para medida de umidade - Karl Fisher da Metrohm, modelo 758 KFD Titrino;
- Estufa de secagem e esterilização, marca FANEM, modelo 315 SE;
- Manômetro diferencial em vidro, tipo tubo em U, para medidas de queda de pressão no leito e vazão do ar de fluidização – precisão 0,5 mm;
- Microscópio eletrônico de varredura – MEV;
- Microscópio óptico acoplado a um sistema de aquisição de imagem – ScanPro
- Moinho coloidal fabricado pela OSMEC, motor EBERLE de ¼ cv e 3470 rpm;
- Termopares tipo T (cobre-constantan) ligados a um indicador digital de temperatura;

3.3 – Metodologia

3.3.1 – Caracterização das partículas

A caracterização das partículas de MICROCEL foi feita utilizando-se os seguintes métodos:

Distribuição granulométrica: A distribuição granulométrica é determinada pela técnica usual de análise de peneiras. A análise consiste em colocar uma determinada quantidade de partículas em um conjunto de peneiras padronizadas da série Tyler, com aberturas na faixa de 180 a 420 µm. Com os dados referentes aos diâmetros de malha das peneiras (d_{pi}) e as frações mássicas das partículas que ficam retidas em cada peneira, X_i , obtem-se o diâmetro médio de Sauter, definido como:

$$\bar{d}_s = \frac{1}{\sum_i^n \frac{X_i}{d_{pi}}} \quad (3.1)$$

Esfericidade: O cálculo da esfericidade é baseado em fotos obtidas através de um microscópio óptico acoplado a um sistema de aquisição de imagem. Uma foto está apresentada na Figura 3.5, para partículas de MICROCEL do tipo MC – 500. O método de estimativa da esfericidade utilizado pelo sistema de aquisição de imagem é baseado na projeção de cada partícula, como mostra a Figura 3.6, através da razão entre o maior círculo inscrito e o menor círculo circunscrito à mesma.

A razão entre o diâmetro do círculo menor pelo maior é igual a esfericidade da partícula, conforme Equação 3.2.

$$\phi = \frac{d_{ci}}{d_{cc}} \quad (3.2)$$

Este procedimento foi feito para um número médio de 100 partículas, escolhidas aleatoriamente durante as projeções.

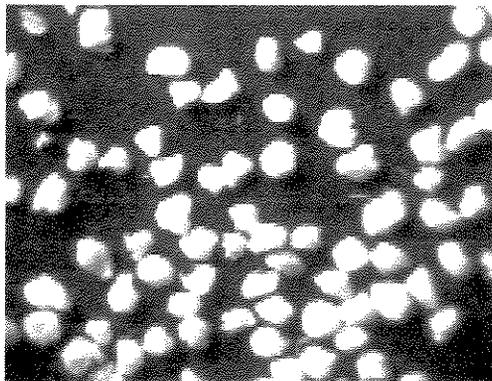


Figura 3.5 – Fotografia da amostra de MICROCEL, MC – 500.

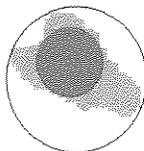


Figura 3.6 – Círculo inscrito e circunscrito numa imagem projetada de uma partícula.

3.3.2 – Aferição da placa de orifício

O controle da vazão de ar na linha para a fluidização das partículas é realizado por uma válvula gaveta. Há uma placa de orifício nesta linha, onde a tomada de pressão

diferencial é feita nos cantos da placa, sendo a leitura realizada em um manômetro diferencial, tipo tubo em U, contendo fluido manométrico de densidade igual a 0,75 g/cm³. A aferição da placa de orifício permite a obtenção da vazão do ar de fluidização pela equação (3.3). A Equação 3.3 foi deduzida de acordo com OWER e PANKHURST (1977):

$$Q = 0,7185 \left[\frac{\Delta P}{273,15 + T} \right]^{0,5} - \left[\frac{0,2225}{P_{est}} \frac{(\Delta P)^{1,5}}{(273,15 + T)^{0,5}} \right] \quad (3.3)$$

onde: Q é a vazão de ar em kg/min

ΔP é a queda de pressão na placa de orifício, em cm de água;

P_{est} é a pressão estática medida na linha de ar, antes da placa, em cm de água;

T é temperatura do ar em °C.

A partir da Equação 3.3 é possível calcular a velocidade média do ar no leito pela relação 3.4, onde ρ_g representa a densidade do ar e A_{OL} é a área da seção transversal do leito de partículas.

$$U = \frac{Q}{\rho_g \cdot A_{OL}} \quad (3.4)$$

3.3.3 – Estudo da fluidodinâmica a seco

O estudo da fluidodinâmica a seco foi realizado para diferentes cargas de MICROCEL, variando na faixa de 400 a 1000 g, com base no trabalho de SILVA (2003), visando determinar a qualidade fluidodinâmica e medindo a vazão do gás e a queda de pressão no leito. A partir dos dados obtidos da queda de pressão e da velocidade superficial do gás construiu-se gráficos típicos da velocidade em função da perda de pressão na coluna, determinando-se assim a velocidade de mínima fluidização (U_{mf}) e a queda de pressão necessária para a operação.

A faixa de massa utilizada neste trabalho apresentou alturas variando de 7,0 a 15,5 cm, em função do leito utilizado para a realização dos experimentos. Para cargas menores que 400 g, a altura era insuficiente para uma boa fluidização, provocando o arraste das partículas. Para cargas acima de 1000 g, foi observada a formação de zonas mortas junto à placa distribuidora, prejudicando a fluidização.

3.3.4 - Estudo fluidodinâmico com atomização

Para o estudo fluidodinâmico com atomização e os experimentos de recobrimento, a carga escolhida é de 800 g, de acordo com resultados obtidos no desenvolvimento do item 3.3.3, por apresentar um melhor comportamento fluidodinâmico, observado nos ensaios por uma intensa movimentação das partículas dentro do leito. A pressão de atomização (P_{at}) foi fixada em 10, 15 e 20 psig. A escolha da faixa de pressão teve como base trabalhos anteriores encontrados na literatura, sobre recobrimento, dentre eles, o trabalho de SILVA (2003). E para cada valor, observou-se o comportamento do leito e mediu-se a velocidade do gás e a queda de pressão para vazões decrescentes. De posse dos dados, construiu-se uma curva da velocidade superficial do gás em função da queda de pressão, determinando-se a velocidade de mínima fluidização (U_{mf}), para cada ensaio, verificando-se a qualidade da fluidização e determinando-se também as condições experimentais de trabalho em relação à pressão de atomização e velocidade do gás para o leito fluidizado.

3.3.5 – Estudo da fluidodinâmica com recobrimento

Para esse estudo, que é o principal objetivo deste projeto, foram realizados ensaios de recobrimento de MICROCEL utilizando a faixa de tamanho de partícula de 300 a 420 μm , com a carga escolhida no item 3.3.4, controlando e fixando-se a vazão de suspensão (W_s), a temperatura do ar de entrada no leito (T_{ar}) e a pressão de atomização (P_{at}). Fez-se um acompanhamento do processo, por amostragem das partículas em tempos pré-determinados, medindo-se a temperatura no leito e a queda de pressão e observando-se continuamente a dinâmica das partículas no leito. Para cada amostra, determina-se a umidade das partículas pelo método e equipamento de Karl Fischer. No leito são colocados termopares para acompanhar a temperatura; dois termohigrometros, um na câmara *plenum* para medir a umidade do ar de entrada no leito e na saída do ciclone para medir a umidade do ar na saída do leito. O comportamento e a qualidade da fluidodinâmica das partículas são acompanhados continuamente, bem como a saturação do leito, verificada por instabilidade fluidodinâmica ou colapso da fluidização. No final de cada processo foram verificados o índice de aglomeração, da seguinte maneira: ao ser retirado do leito, o material é colocado em uma peneira padronizada da série Tyler com abertura de 600 μm . O peneiramento foi feito manualmente, para evitar a quebra dos aglomerados, e a massa retida

na peneira de 600 μm foi considerada como aglomerado e a quantidade obtida em cada ensaio, índice de aglomeração. Este índice de aglomeração é determinado pela Equação (3.6). A eficiência do processo de recobrimento é calculada pela definição utilizada por vários pesquisadores, em trabalhos de recobrimento de partículas (KUCHARSKI e KMIÉC, 1988; OLIVEIRA 1992; AYUB, 1993, DONIDA, 2000, e SILVA, 2003), através do balanço de massa do processo.

A eficiência do processo é calculada pela equação:

$$\eta = \frac{M_f - M_o}{W_s \cdot C_s \cdot t_r} \cdot 100 \quad (3.5)$$

O índice de aglomeração é obtido por:

$$Agl = \frac{M_{agl}}{M_t} \cdot 100 \quad (3.6)$$

O crescimento relativo de massa é dado pela seguinte equação:

$$\chi = \frac{M_f - M_o}{M_o} \cdot 100 \quad (3.7)$$

3.3.6 – Vazão máxima de suspensão e grau de saturação do leito.

De acordo com OLIVEIRA (1996) a capacidade máxima de suspensão suportada pelo leito é aquela na qual ocorre uma ou mais condições a seguir:

- i) o leito torna-se fluidodinamicamente instável e/ou;
- ii) a umidade do ar de saída do leito atinge um valor próximo da saturação e/ou;
- iii) a relação massa de água evaporada pela massa de água alimentada é menor que 1,0

Em seu trabalho, realizado em secador de leito de jorro carregava-se o leito com uma determinada massa de partículas inertes. A injeção do ar de jorro era feita pela base.

Atingido o regime, iniciava-se a alimentação da suspensão a secar, a uma vazão pré-fixada. Aguardava-se de 20 a 30 minutos para que o processo atingisse novamente o regime. A seguir efetuava-se medidas de temperatura de entrada, da temperatura e umidade de saída do ar. Aumentava-se a vazão e repetia-se o procedimento até que se atingisse alguma das condições citadas acima.

O conceito de grau de saturação do leito foi adotado como parâmetro e seu valor foi determinado para cada vazão de suspensão utilizada. As Equações 3.9 a 3.12 definem este conceito de grau de saturação, o qual foi utilizado em trabalhos cuja alimentação da pasta ou suspensão era intermitente. No presente projeto, a vazão de suspensão é alimentada continuamente, por isso a necessidade de determinar este parâmetro do processo em cada instante, e não ao final, tendo em vista que os ensaios não tiveram o mesmo tempo de processo, por causa do colapso do leito. Para efeito de comparação entre os ensaios, utilizou-se o grau de saturação instantâneo (S'), ou seja, o grau de saturação (S) dividido pelo tempo de processo total VIEIRA e ROCHA (2004).

$$S' = \frac{S}{t} \quad (3.8)$$

na qual: S : grau de saturação (-)

t : tempo de processo (min)

$$S = \frac{V_s}{V_{poros}} \quad (3.9)$$

na qual: V_s : volume de suspensão alimentada (cm^3)

V_{poros} : volume de poros no leito fixo (cm^3)

$$V_s = W_s \cdot t \quad (3.10)$$

na qual: W_s : vazão de suspensão alimentada (cm^3/min)

$$V_{poros} = V_T - V_p = \varepsilon \cdot V_T \quad (3.11)$$

na qual: V_T : volume total do leito fixo de partículas (cm^3)

ε : porosidade do leito fixo (-)

V_p : volume de partículas (cm^3)

$$\varepsilon = 1 - \frac{V_{\text{Sol}}}{V_T} = 1 - \frac{M_{\text{Sol}}}{\rho_{\text{Sol}}} \cdot \frac{1}{V_T} \quad (3.12)$$

na qual: V_{Sol} : volume de sólidos (cm^3)

M_{Sol} : massa de sólidos (g)

ρ_{Sol} : densidade aparente dos sólidos (g/cm^3)

3.4 – Planejamento Experimental

Para a realização dos ensaios experimentais foi proposto um planejamento fatorial 2^3 , para os fatores: pressão de atomização (P_{at}), nos níveis 10, 15 e 20 psig; vazão de suspensão (W_s), 6,4; 11,0 e 18,0 g/min e temperatura (T_g), mantida em 50, 60 e 70 °C. No entanto, SILVA (2003) considerou a temperatura de 70 °C, como a condição ótima para recobrir celulose microcristalina, utilizando a mesma suspensão. Com base nesse resultado, e devido a alguns fatores observados durante a realização dos ensaios experimentais: tempo de secagem para que o leito permanecesse com estabilidade fluidodinâmica e a limitação técnica de alguns produtos empregados na suspensão de recobrimento, os testes foram realizados com a temperatura fixa de 70 °C. Em seguida, os ensaios foram conduzidos com a temperatura constante e os resultados acabaram por gerar um planejamento fatorial do tipo 3^2 , já que as outras variáveis independentes foram mantidas para os três níveis.

O diâmetro das partículas não foi analisado neste trabalho como variável independente, porque a influência desta variável já tinha sido avaliada anteriormente no trabalho de SILVA (2003), onde o diâmetro médio das partículas (d_p) apresentou efeito positivo para a eficiência do processo e para o crescimento de partículas. Com base nesses resultados, foi escolhida a fração granulométrica ótima deste trabalho.

Depois de realizados os testes preliminares, com as partículas na faixa especificada de diâmetro e carga, o processo foi realizado com alimentação da suspensão de recobrimento de forma contínua. Para analisar a influência das variáveis operacionais no recobrimento de partículas utilizou-se da técnica de planejamento fatorial, segundo BARROS NETO *et al.* (2002). De acordo com um planejamento estatístico do tipo 3^2

foram realizados 9 ensaios de recobrimento, tendo como fatores: pressão de atomização (P_{at}), e vazão de suspensão (W_s). Estes parâmetros foram analisados em três níveis. A eficiência (η), índice de aglomeração (Agl), e a saturação instantânea (S'), foram as variáveis respostas analisadas no planejamento fatorial.

Um acompanhamento do comportamento do leito é feito durante cada ensaio, com base na umidade das partículas durante o processo de recobrimento ($X_{microcel}$). A Tabela 3.4 apresenta os fatores e seus níveis, estabelecidos para os experimentos.

Tabela 3.4 – Variáveis Independentes e seus níveis para o planejamento experimental.

Variáveis Independentes	Níveis		
	-1	0	+1
P_{at} (kPa)	68,95 (10 psig)	103,42 (15 psig)	137,89 (20 psig)
W_s (Kg/s)	6,40 (g/min)	11,00 (g/min)	18,00 (g/min)

3.5 – Procedimento experimental

3.5.1 – Recobrimento de partículas

A preparação do leito para o início do processo de recobrimento é realizada da seguinte forma. As partículas devidamente pesadas são colocadas no equipamento, onde são fluidizadas até atingir as condições térmicas pré-determinadas de operação e para que os finos ($d_p < 100 \mu m$) desagreguem das partículas maiores (300-420 μm) e sejam coletados pelo ciclone.

A suspensão é colocada em um recipiente com a capacidade de 2000 ml. A partir do início da atomização, são feitas as observações de acompanhamento do comportamento fluidodinâmico do leito, com retiradas de amostras de partículas em tempos pré-determinados, para determinação da umidade dessas partículas através do método Karl Fischer. O momento do colapso ou defluidização do leito é identificado quando o leito de

partículas cessa a movimentação, sendo primeiramente observado o aparecimento de zonas mortas próximo à placa distribuidora.

Quando o leito defluidizava, ou seja, colapsava, a atomização da suspensão era interrompida. Fazia-se a leitura da temperatura, queda de pressão, e umidade relativa do ar de entrada e saída. Em seguida, determinava-se a umidade das partículas utilizando o método Karl Fischer, em triplicata.

Ao término do processo de recobrimento, a bomba peristáltica é desligada e a retirada do material do leito é feita com o auxílio de um aspirador. O material recoberto retirado do leito é pesado e os dados obtidos da pesagem são utilizados nos cálculos da eficiência e posteriormente do índice de aglomeração.

CAPÍTULO 4

RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 – Caracterização das partículas de MICROCEL

As partículas de celulose microcristalina, MICROCEL, utilizada como excipiente no processo de recobrimento foram caracterizadas por peneiramento. A análise consiste em colocar uma determinada quantidade de partículas em um conjunto de peneiras padronizadas da série Tyler, com aberturas na faixa de 180 a 420 μm . A faixa granulométrica utilizada nos ensaios de recobrimento foi de 300-420 μm , apresentando um diâmetro médio de 360 μm .

A celulose microcristalina comercial, MC-500 apresenta uma ampla faixa de distribuição granulométrica, onde 50 % em massa fica retida na peneira de 250 μm , segundo o fabricante. A Tabela 4.1 apresenta as propriedades físico-químicas da celulose microcristalina MC-500.

Tabela 4.1 – Características da celulose microcristalina, MICROCEL, fornecida pelo fabricante (BLANVER FARMOQUÍMICA LTDA.).

Propriedades Físico-químicas	
Estado físico	Sólido
Forma	pó fino
Cor	Branco
Odor	Inodoro
PH	5,5 a 7,0 (5 g / 40 ml de água)
Temperatura de ignição	340 °C
Inflamabilidade	não inflamável
Limites de explosividade	não explosivo
Densidade	0,25 a 0,40 g / ml
Solubilidade	insolúvel em água, parcialmente solúvel em álcalis

Uma caracterização mais detalhada da celulose microcristalina pode ser vista no trabalho de SILVA (2003).

4.2 – Estudo da fluidodinâmica a seco

4.2.1 – Fluidodinâmica do leito

As curvas da velocidade superficial do gás em função da queda de pressão, obtidas experimentalmente nos ensaios preliminares, apresentaram um comportamento similar, típico para leitos fluidizados conforme descrito na literatura (KUNII e LEVENSPIEL, 1991). A Figura 4.1 apresenta a curva característica traçada a partir dos dados obtidos da queda de pressão e da velocidade superficial do gás no decorrer do ensaio realizado com carga igual a 800 g, evidenciando a velocidade de mínima fluidização. Os testes foram realizados conforme mencionado na metodologia. Realizaram-se vários ensaios fluidodinâmicos com cargas variando de 400 a 1000 g. Todos ensaios apresentaram comportamento similar ao da Figura 4.1.

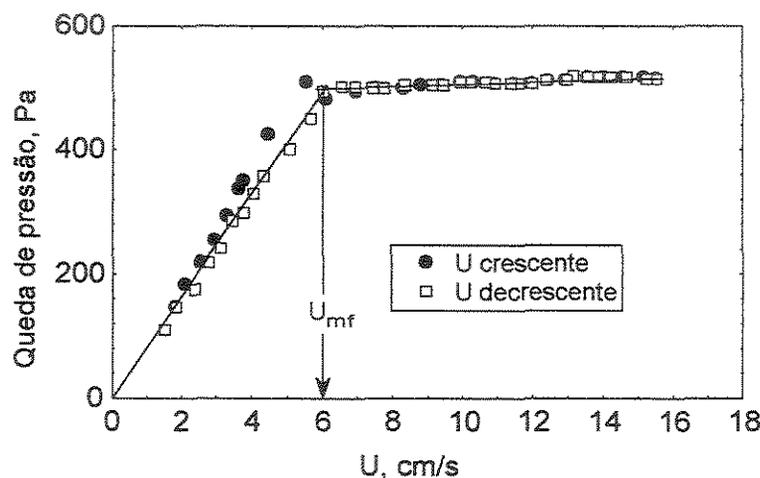


Figura 4.1- Curva característica de fluidização com carga de 800 g, de celulose microcristalina – MICROCEL.

Na realização dos ensaios notou-se um movimento lento das partículas deslizando pela parede do leito em movimento contínuo ascendente e descendente, antes de surgir o aparecimento de pequenas bolhas que explodem na superfície do leito de partículas. Essa particularidade é característica de partículas do grupo A e observado também para as partículas de celulose microcristalina classificadas como sendo do grupo B devido essas partículas encontrarem-se numa região muito próxima das partículas do grupo A como exemplificado no diagrama de Geldart e identificado por uma seta na Figura 4.2.

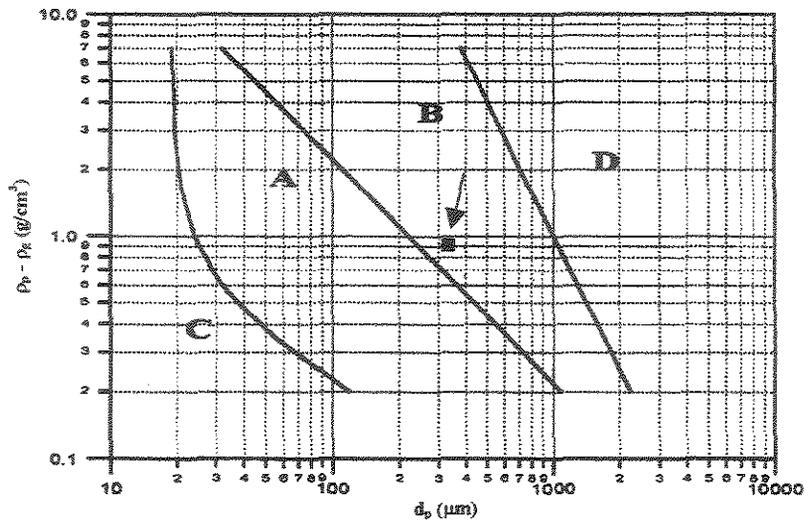


Figura 4.2 – Identificação das partículas de celulose microcristalina utilizadas neste trabalho no diagrama de Geldart.

A velocidade de mínima fluidização foi determinada através do método clássico proposto por RICHARDSON (1971). Para os ensaios realizados traçou-se a evolução da queda de pressão (ΔP) em função da velocidade superficial do gás (U) de forma crescente e decrescente. A velocidade de mínima fluidização foi obtida para a curva decrescente e corresponde a interseção da linha para o leito fixo com a linha horizontal, sendo a parte linear da curva com a linha horizontal referente a perda de carga constante onde o leito encontra-se totalmente fluidizado.

A região de mínima fluidização é bem definida para diferentes cargas utilizadas, como apresentado na Figura 4.3 e os valores de U_{mf} apresentaram-se independentes da carga no leito. A região da queda de pressão constante durante a fluidização não apresentou flutuações significativas, tendo um comportamento bem definido, como constatado e descrito por (SILVA, 2003).

A Tabela 4.2 apresenta os valores obtidos nos ensaios experimentais, através dos gráficos da Figura 4.3, para a velocidade de mínima fluidização para as diferentes cargas de sólidos estudadas. Para efeito de cálculo foram escolhidas as cargas de 400, 600 e 800 g. Constatou-se a não influência da carga na velocidade de mínima fluidização, esperado da

teoria, obtendo-se um valor médio da velocidade de mínima fluidização de $5,5 \pm 0,44$ cm/s, para as diferentes cargas analisadas.

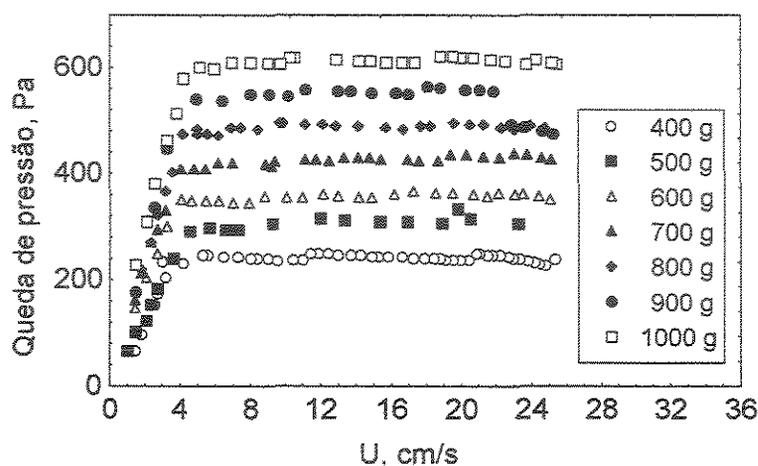


Figura 4.3 – Comparação de curvas características de fluidização para diferentes cargas de celulose microcristalina - MICROCEL - no leito.

Na Figura 4.3 observa-se a influência da carga de partículas na queda de pressão do leito durante o regime de fluidização. Pela técnica de fluidização (KUNII e LEVENSPIEL, 1991), o leito encontra-se em regime de fluidização particulada quando a queda de pressão for equivalente ao peso do leito de partículas dividido pela área do leito (F_p/A_{oL}). Se a queda de pressão observada for menor que F_p/A_{oL} , indica que o leito esta parcialmente fluidizado. A Tabela 4.2 também apresenta uma comparação entre os valores da queda de pressão e do peso do leito.

Tabela 4.2 – Queda de pressão e velocidade de mínima fluidização em função da carga de partículas.

Carga de partículas (g)	U_{mf} (cm/s)	ΔP (Pa)	F_p/A_{oL}	$\frac{\Delta P}{F_p/A_{oL}}$
	Valor			
400	5,21	240	254,91	0,94
600	5,28	368	382,36	0,96
800	6,00	500	509,81	0,98

Durante os experimentos observou-se visualmente o comportamento do leito fluidizado, o que resultou na escolha da carga de 800 g de partículas que apresentou a

melhor qualidade fluidodinâmica, determinada por uma intensa movimentação das partículas dentro do leito e escolhida para os experimentos iniciais de recobrimento. Para os ensaios de recobrimento determinou-se o ponto de operação, com a velocidade do ar a partir de duas vezes a velocidade de mínima fluidização. Segundo KUNII e LEVENSPIEL (1991), em leitos fluidizados borbulhantes de sólidos do tipo B, a fluidização está plenamente desenvolvida a partir da velocidade de mínimo borbulhamento. Verificou-se experimentalmente que as partículas utilizadas neste trabalho apresentaram velocidade de mínimo borbulhamento praticamente igual à velocidade de mínima fluidização do leito. Sendo assim, optou-se por operar na condição fixa de $2U_{mf}$, a qual proporcionou uma fluidização vigorosa com boa circulação dos sólidos no leito, sem a presença de zonas mortas ou caminhos preferenciais.

A literatura apresenta que a relação entre a altura do leito e o diâmetro da coluna é um parâmetro importante para as condições de fluidização, classificando os leitos como rasos ou profundos. De acordo com GELDART (1986), o leito é raso se H_L/D_L é menor que 1 e profundo se H_L/D_L for maior que 1. Quando se trabalha na região de leito raso, podem ocorrer desvios entre a velocidade de mínima fluidização obtida experimentalmente e as calculadas pelas equações da literatura, obtendo-se inclusive valores diferentes para cargas de diferentes partículas. Esse comportamento é devido à maior ocorrência de canais preferenciais no leito pela dificuldade de distribuição satisfatória do gás de fluidização. No caso deste trabalho, para a carga de 800 g, H_L/D_L é igual a 0,86 (raso) o leito apresentou fluidização borbulhante com boa movimentação de partículas e velocidade de mínima fluidização média de $5,5 \pm 0,44$ cm/s, não apresentando diferenças significativas entre as cargas.

4.2.2 – Estudo fluidodinâmico com atomização

Os experimentos mostraram que a influência do ar de atomização, na queda de pressão do leito, durante a fluidização, é praticamente nula, para as faixas de pressão avaliadas: 10, 15 e 20 psig. No entanto, o ar de atomização auxiliou na movimentação das partículas fazendo com que houvesse uma maior mistura entre elas. A cada aumento da pressão do ar de atomização foi observada uma melhora na movimentação do leito para a

faixa analisada. Na Figura 4.4 verifica-se uma curva característica de fluidização com dados relativos aos ensaios com e sem ar de atomização.

O ar de atomização causou um aumento na queda de pressão apenas na parte linear da curva, para o leito fixo, à velocidade decrescente, como observado na Figura 4.4. O que não causa problemas com relação ao recobrimento, uma vez que os ensaios são realizados com velocidade do ar acima da velocidade de mínima fluidização ($U = 2U_{mf}$).

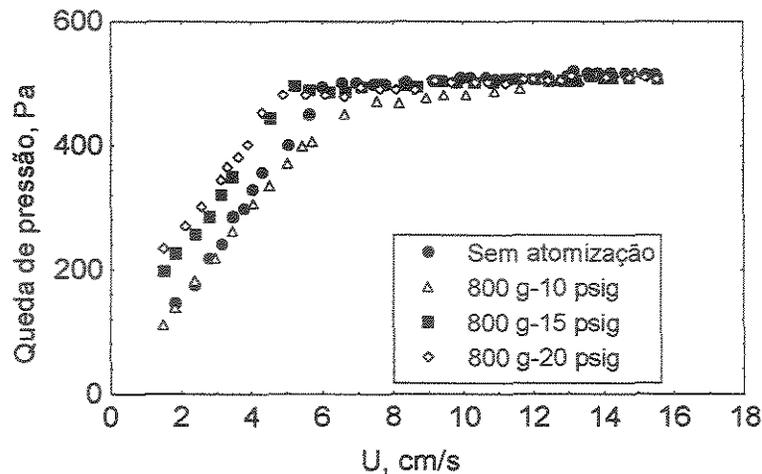


Figura 4.4 – Influência do ar de atomização durante a fluidização.

4.3 – Estudo da fluidodinâmica com recobrimento

Determinadas as condições de operação estáveis do processo, foram realizados alguns ensaios de recobrimento da celulose microcristalina MC – 500 utilizando suspensão polimérica à base de Eudragit® contendo 12 % de sólidos em suspensão. A faixa granulométrica de partículas utilizada foi de 300 a 420 μm , com uma carga de 800 g, escolhida de acordo o procedimento do item 3.3.4. Após ajustada a condição de operação a ser usada, inicia-se o processo de recobrimento com a introdução da carga de partículas previamente pesadas. Estabilizada essa condição, dá-se início à alimentação da suspensão de recobrimento. A temperatura do ar de alimentação é fixada em 70 °C. Essa foi a temperatura máxima utilizada por SILVA (2003) quando trabalhou com recobrimento de MC-500 utilizando suspensões a base de Eudragit®, devido as limitações técnicas do polímero empregado. A suspensão de recobrimento foi alimentada sob pressão de

atomização de 10, 15 e 20 psig e vazões de 6, 11 e 16 ml/min verificadas no “display” da bomba, que correspondem em média a vazões reais de 6,4; 11,0 e 18,0 g/min.

Identificou-se durante os ensaios de recobrimento que o colapso do leito ocorre quando há um decréscimo na razão de umidade das partículas, como pode-se também observar na Figura 4.5 (a), (b) e (c).

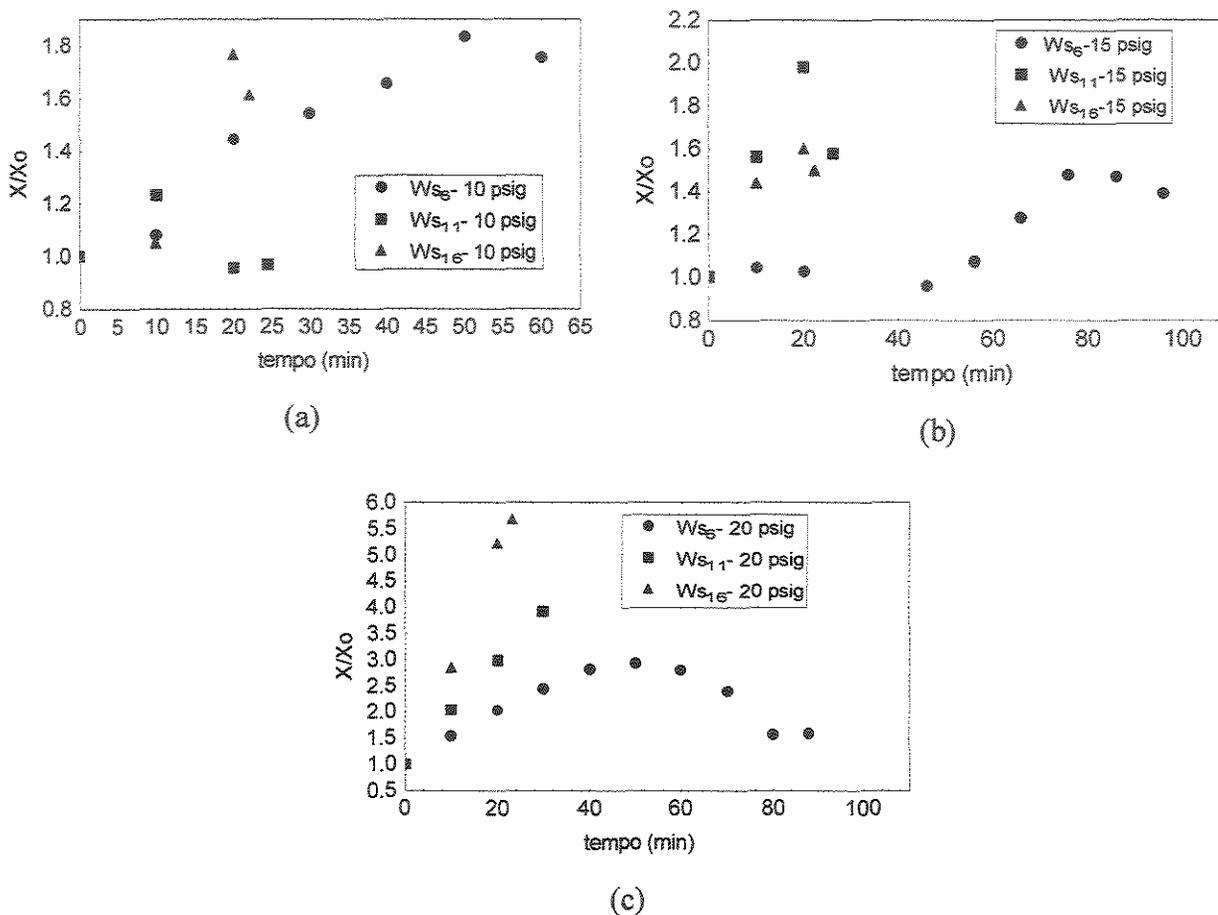


Figura 4.5 – Evolução da umidade das partículas no processo de recobrimento em diferentes vazões de suspensão e mesma pressão.

No decorrer dos ensaios verificou-se que a umidade relativa do ar de saída do leito, medido por um termohigrometro, atingia 100 % em poucos minutos e ainda assim o leito mostrava-se com boa movimentação, o que indica que a saturação do ar de secagem não é um parâmetro que define o colapso do leito.

A defluidização do leito é observada no momento em que o leito muda de regime, ou seja, passa de leito fluidizado para um regime com um jato central e o aparecimento de zonas mortas formando uma região anular estagnada. Observa-se um caminho preferencial

na parte central do leito, como uma espécie de canal, por onde o ar passa com maior facilidade fazendo com que as partículas, nesta região, continuem em movimento até o empacotamento por completo. Devido a esse canal preferencial as partículas nessa região secam mais rapidamente, por haver uma alta taxa de transferência de calor fazendo com que a umidade dessas partículas decresça consideravelmente. Essa é justamente a região de coleta de amostra das partículas.

No processo de amostragem das partículas nos tempos determinados, durante o ensaio, o coletor é inserido no leito e boa parte do sólido coletado é retirado da região central. No momento em que o leito tende ao colapso ocorre um decréscimo na taxa de umidade dos sólidos retirados dessa região devido ao canal preferencial com relação as da região anular. Isto explica a diminuição da umidade dos sólidos observada na defluidização do leito. A Figura 4.6 apresenta a fotografia do equipamento em funcionamento e um esquema dos regimes fluidodinâmicos observados no momento em que o leito tende ao colapso, comprovado pela determinação da umidade nesse instante. Na fotografia do leito em operação, observa-se na foto (a) da Figura 4.6, a formação das bolhas e na foto (b), a formação do jato central identificado pelas setas, onde se tem uma melhor visão do fenômeno no esquema mais detalhado logo abaixo.

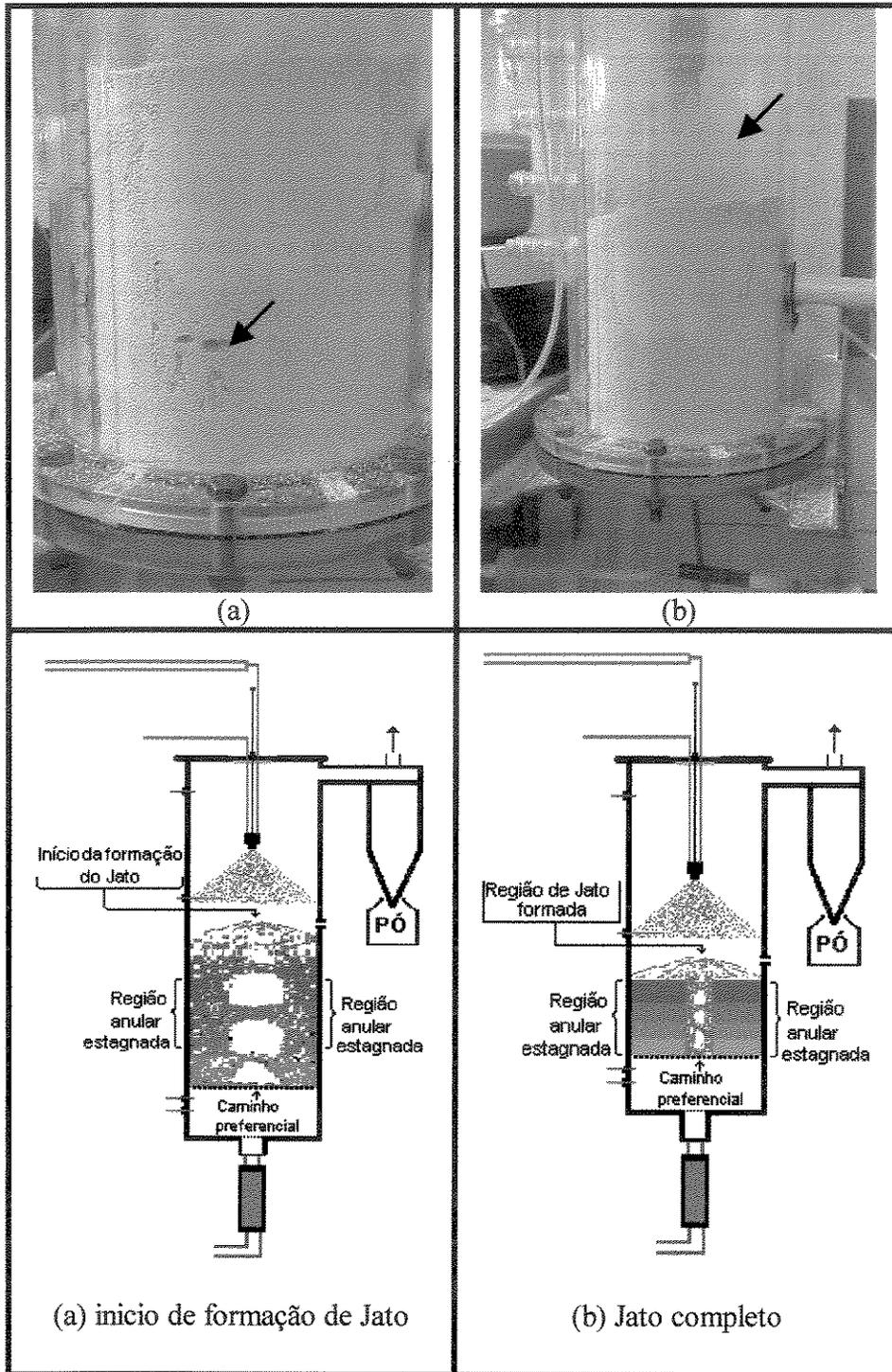


Figura 4.6 (a) e (b) – Fotografia e esquema do mecanismo de formação do canal central, mudança de regime fluidizado para o jato no momento em que o leito tende ao colapso.

Inicialmente pensou-se que o colapso do leito estava relacionado com a saturação do ar de fluidização dentro do leito, o que não foi constatado nos experimentos realizados uma vez que a umidade relativa do ar de saída alcançava 100 % em torno de 10 a 15 min de

processo para todos os experimentos e mesmo assim o leito ainda permanecia por mais 10 a 80 min em regime de fluidização, sem nenhum sinal indicativo de colapso, dependendo da vazão de suspensão e da pressão de atomização.

Um dos fatores que contribuem para que o leito venha a colapsar é o aparecimento de caminhos preferenciais, e zonas mortas, junto à placa distribuidora. O aumento da massa das partículas, devido ao crescimento ocorrido durante o processo de recobrimento contribui para um empacotamento dificultando a fluidização. Esse crescimento ocorre ao passo em que a película de filme recobridora vai formando camadas sobrepostas na superfície das partículas. A Figura 4.7 representa um esquema que representa esse fenômeno. A suspensão é atomizada sobre o leito de partículas e as gotas formadas na atomização entram em contato com a superfície a ser recoberta. Quando a suspensão de recobrimento entra em contato com a superfície das partículas ocorre um molhamento da superfície. Acontece, a seguir, a coalescência das gotas e a secagem, pelo ar quente a que as partículas são expostas.

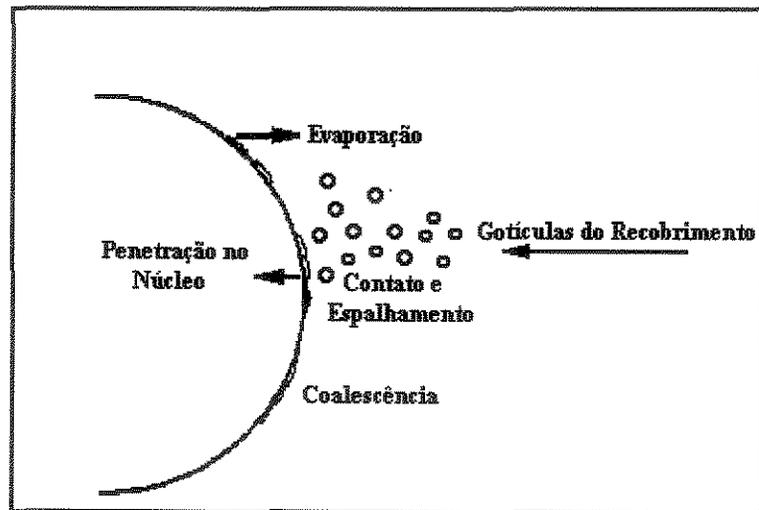


Figura 4.7 – Esquema do processo de recobrimento (ROCHA, 2001).

Outro fator que prejudica a estabilidade da fluidização devido ao aumento do grau de saturação, é o aumento das forças interpartículas (SPITZNER e FREIRE, 2001). A suspensão de recobrimento ao ser injetada no leito por um bico atomizador de duplo fluido, aumenta as forças interpartículas. Essas forças são formadas pela força de coesão e pela força viscosa, devido ao fato da secagem não ser imediata por se tratar de suspensão polimérica aquosa, formando pontes líquidas e sólidas que prejudicam a circulação das

partículas, desestabilizando a fluidização. A idéia de grau de saturação foi bem aplicada em trabalhos onde o líquido alimentado era glicerol e a saturação do leito não sofria variações, como durante o processo de recobrimento (SCHNEIDER e BRIDGWATER, 1993; PASSOS e MASSARANI, 2000).

Os resultados dos ensaios de recobrimento com alimentação da suspensão de recobrimento de forma contínua encontram-se na Tabela 4.3. A eficiência do processo foi calculada pela Equação (3.5). Para os cálculos da cinética de crescimento (χ) e aglomeração (Agl), utilizou-se as Equações (3.7) e (3.6) respectivamente apresentada na metodologia e utilizada por vários autores e a saturação instantânea (S') foi obtida pela Equação (3.8) utilizada por ADEODATO (2003) e VIEIRA e ROCHA (2004).

Os resultados obtidos dos cálculos da eficiência para os experimentos realizados foram consistentes, indicando que a metodologia empregada é adequada para essa determinação no processo de recobrimento com atomização contínua. Para efeito dos cálculos e de comparação, foram levadas em conta todas as massas retiradas durante o experimento, inclusive os finos arrastados. Os valores obtidos de crescimento das partículas foram característicos de recobrimento tipo filme, valores inferiores a 6 % em massa, os índices de aglomeração apresentaram valores que variam desde 0,38 a 6,28 %, onde os melhores resultados obtidos foram para altas vazões. Por outro lado, o tempo de processo foi pequeno para determinadas condições de processo, como apresentado na Tabela 4.3. Os resultados encontrados para a saturação instantânea foram coerentes, estando na mesma ordem de grandeza se comparados com os valores encontrados por ADEODATO (2003), trabalhando com recobrimento em leito de jorro.

Tabela 4.3 - Resultados experimentais dos ensaios de recobrimento.

Ensaio	t_p (min)	P_{at} (psig)	W_s (g/min)	η (%)	χ (%)	Agl (%)	$S' \cdot 10^3$ (min ⁻¹)
1	60	10	6,4	58,1	2,66	2,42	5,370
2	96	15	6,4	63,8	5,48	6,28	6,310
3	24,4	10	11,0	52,8	1,98	2,23	10,690
4	26,3	15	11,0	89,4	4,07	0,43	11,951
5	22,4	15	18,0	70,8	4,03	0,41	16,687
6	23,3	20	18,0	76,8	5,09	1,08	16,783
7	22,1	10	18,0	91,2	5,06	0,94	16,828
8	88	20	6,4	51,0	4,76	1,36	6,438
9	30	20	11,0	99,7	4,35	0,38	10,023

Para efetuar a análise estatística dos resultados obtidos para o crescimento relativo de partículas, não foram utilizados os dados constantes da Tabela 4.3, já que houve uma variação no tempo final de processo, e o crescimento é função desse tempo. Dessa forma, foi necessário estabelecer um tempo único, que foi fixado em 20 min para que todas as corridas pudessem ser incluídas. A Tabela 4.4 apresenta os resultados obtidos; é importante salientar, que, para efeito dos cálculos, considerou-se que a eficiência do processo manteve-se constante durante todo o recobrimento e, portanto o crescimento foi linear. Com base nesses resultados fez-se a análise estatística para a resposta crescimento relativo.

Tabela 4.4 – Resultado para o crescimento relativo de partículas para um tempo fixo de 20 min.

Ensaio	P_{at} (psig)	W_s (g/min)	tempo (min)	χ (%)
1	10	6,4	20	0,89
2	15	6,4	20	1,14
3	10	11,0	20	1,62
4	15	11,0	20	3,09
5	15	18,0	20	3,59
6	20	18,0	20	4,37
7	10	18,0	20	4,58
8	20	6,4	20	1,08
9	20	11,0	20	2,90

Observou-se durante os ensaios de recobrimento que os aglomerados formavam-se com maior frequência na zona de aspersão, com a agregação de partículas e suspensão no bico atomizador, aumentando à medida que as partículas chegavam a essa região. Essa massa de agregados ao tornar-se pesada caía dentro do leite, não quebrava com a movimentação das partículas, contribuindo para a formação de aglomerados. Comportamento semelhante foi observado por SILVA (2003). Verificou-se também no processo de recobrimento que a formação desses aglomerados era favorecido pelas menores pressões de atomização. Quanto menor essa pressão, maior é o tamanho das gotículas formadas pelo jato de aspersão, favorecendo a formação de aglomerados, os quais também aumentam com a vazão de suspensão (W_s). Resultados semelhantes foram encontrados por vários autores (BECHER e SCHLÜNDER, 1996; WATAMO *et al.*, 1997; PASSOS *et al.*, 1988; SAKAI e ATAÍDE, 2000), os quais observaram que a vazão de líquido adicionada no leite é um fator limitante para a aglomeração. A Figura 4.8 é uma fotografia de um

aglomerado formado durante o processo de recobrimento, onde esse aglomerado obtido chega a medir aproximadamente 11 vezes o diâmetro médio das partículas recobertas, que é de 382 μm .

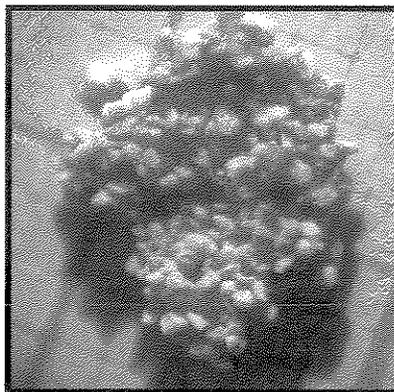
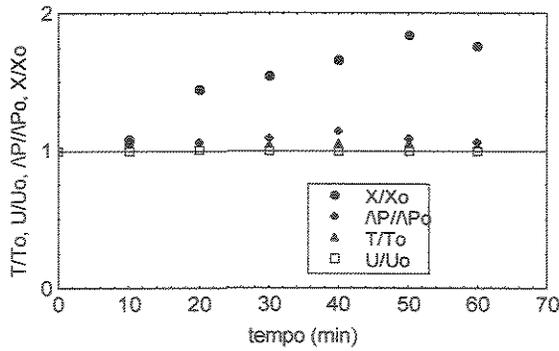


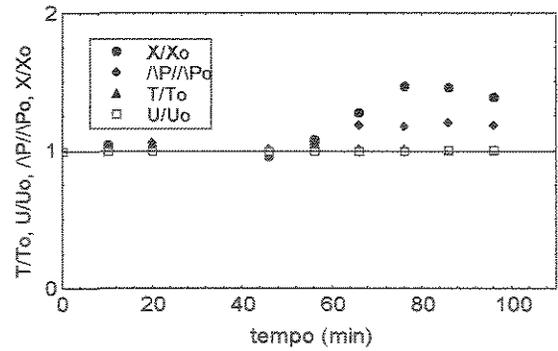
Figura 4.8 – Fotografia de um aglomerado obtido durante o processo de recobrimento, nas condições do ensaio 04 ($W_s = 11,0$ g/min e $P_{at} = 15$ psig), dimensões 4,6 x 5,1 mm.

4.3.1 – Acompanhamento da umidade das partículas de celulose microcristalina

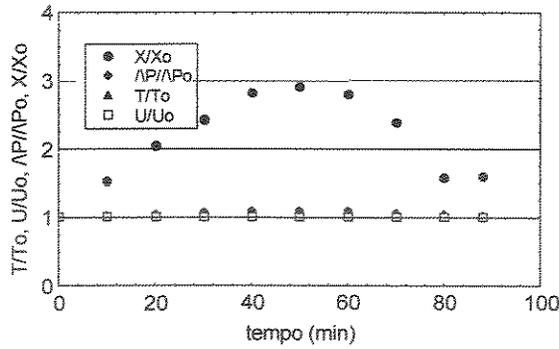
As observações feitas durante os ensaios de recobrimento indicaram que a pressão de atomização associada a vazão de suspensão influencia significativamente o processo de recobrimento com atomização da suspensão de forma contínua. A defluidização do leito é observada quando inicia-se a formação de caminhos preferenciais e aparecimento de zonas mortas junto a placa distribuidora, dificultando a percolação do ar de fluidização entre os espaços intersticiais das partículas causando um aumento na razão de umidade ao longo do tempo de processo devido a dificuldade encontrada pelo ar de fluidização pré-aquecido em trocar calor com o meio. Esse aumento na razão de umidade pode ser verificado na Figura 4.9 (a - i) para as condições operacionais estabelecidas, onde a temperatura e a velocidade do ar de fluidização se mantiveram constantes. Nessas figuras são apresentadas também as razões de pressão, velocidade do ar de fluidização e a temperatura do processo em valores constantes, sendo que, essas duas últimas foram bem controladas durante todo o processo, como verificados nos gráficos da Figura 4.9.



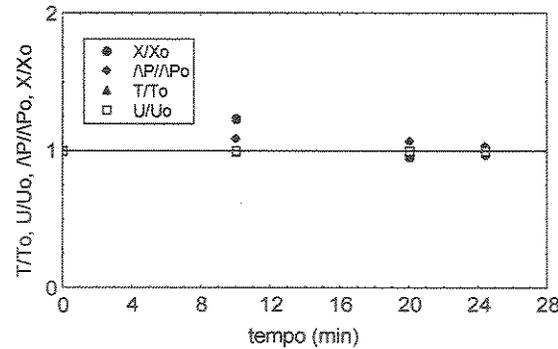
(a) $W_s = 6,4$ g/min e $P_{at} = 10$ psig



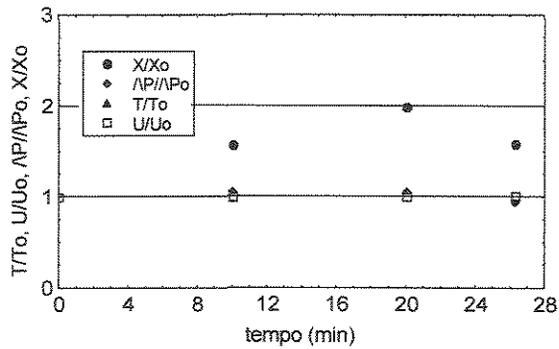
(b) $W_s = 6,4$ g/min e $P_{at} = 15$ psig



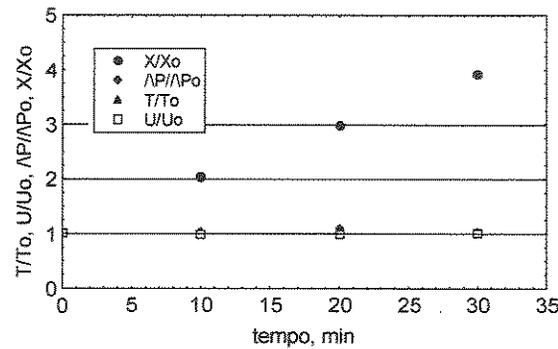
(c) $W_s = 6,4$ g/min e $P_{at} = 20$ psig



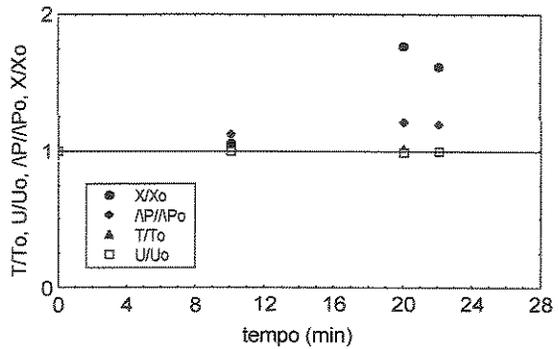
(d) $W_s = 11,0$ g/min e $P_{at} = 10$ psig



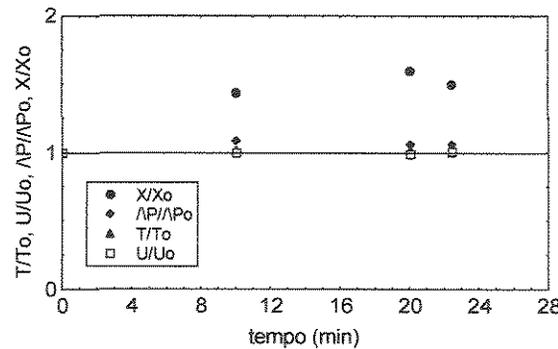
(e) $W_s = 11,0$ g/min e $P_{at} = 15$ psig



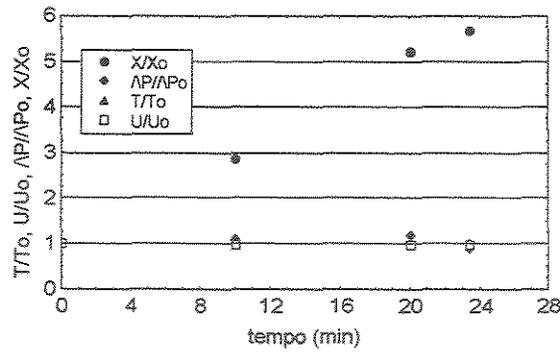
(f) $W_s = 11,0$ g/min e $P_{at} = 20$ psig



(g) $W_s = 18,0$ g/min e $P_{at} = 10$ psig



(h) $W_s = 18,0$ g/min e $P_{at} = 15$ psig



(i) $W_s = 18,0 \text{ g/min}$ e $P_{at} = 20 \text{ psig}$

Figura 4.9 – Evolução da umidade em relação ao tempo de processo.

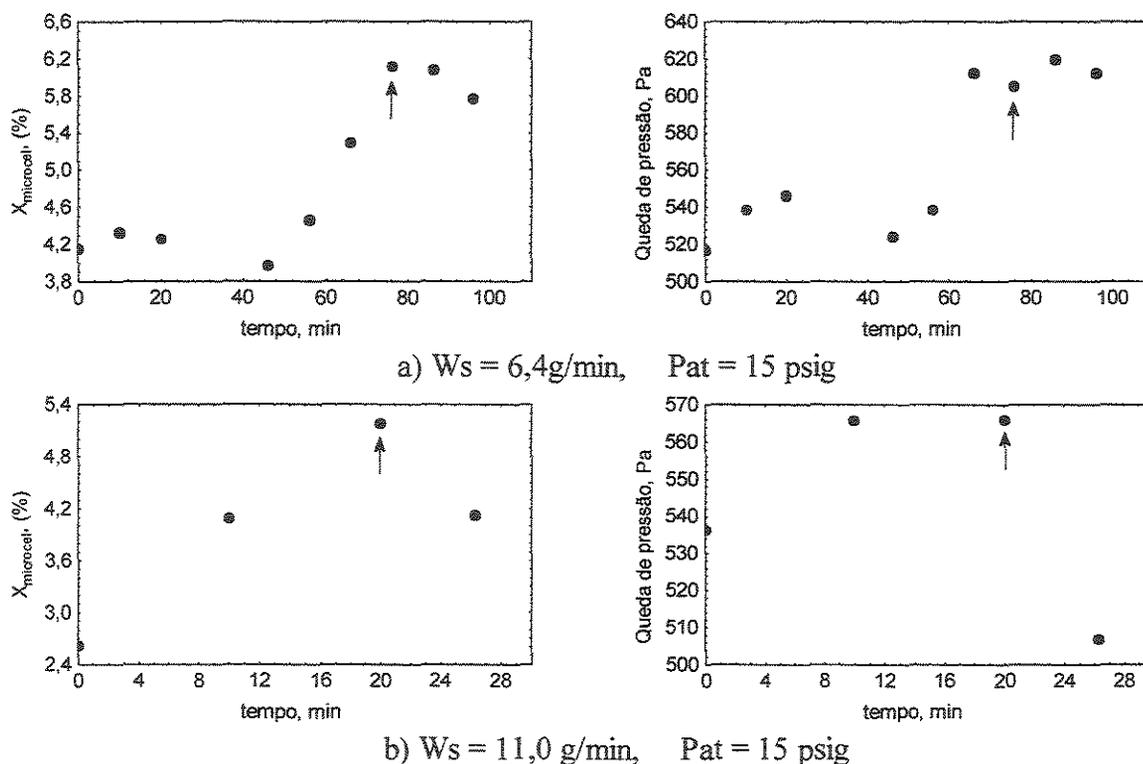
Em cada figura, apresentada, tem-se o comportamento da umidade durante o processo de recobrimento de forma contínua. A defluidização do leito foi observada durante os ensaios de recobrimento para diferentes vazões de suspensão e pressões de atomização. A determinação da umidade é feita durante os ensaios em tempos predeterminados. Na Figura 4.9 (b) pode-se observar uma queda na razão de umidade no intervalo de tempo entre 20 e 40 min, essa diminuição foi causada pelo entupimento do bico atomizador. Observou-se também que para baixa vazão de suspensão, consegue-se um tempo maior de processo, entre 60 e 95 min, entretanto para vazões intermediária e alta, o tempo de processo cai para uma faixa de intervalo entre 20 a 30 min.

A Figura 4.10 apresenta a evolução da umidade e da queda de pressão em função do tempo para cada vazão de suspensão e pressão de atomização trabalhada. Pode-se notar que a queda de pressão e a umidade das partículas apresentam o mesmo comportamento durante o experimento de recobrimento podendo ser visualizado claramente na Figura 4.10 (a, b, e c). Verifica-se também que quando a umidade das partículas atinge seu ponto crítico, ou seja, o valor máximo suportado pelo leito, ocorre uma diminuição na queda de pressão causada pela instabilidade do leito fluidizado.

A relação da instabilidade fluidodinâmica no leito com a diminuição da queda de pressão foi verificada também para leitos de jorro nos trabalhos de MEDEIROS (2001) durante a secagem de polpas de frutas em leito de jorro, de ADEODATO (2003) e VIEIRA e ROCHA (2004), no processo de recobrimento em leito de jorro, onde a queda de pressão diminui com o decréscimo da circulação das partículas na região do ânulo, diminuindo a porosidade nessa região e conseqüentemente aumentando a porosidade na região de jorro.

No trabalho de HÉMATI (2003), resultados similares da relação da queda de pressão com a umidade das partículas foram obtidos durante o estudo de recobrimento e granulação em leito fluidizado.

Visualizou-se durante os experimentos que, no momento em que as partículas atingem a umidade máxima, ocorreu a formação de um canal central antes do leito tender ao colapso, por onde a maior parte do ar de fluidização escoava e a formação de zonas mortas na região anular, causando a instabilidade do leito fluidizado. Neste canal central as partículas que ali fluidizam, estão submetidas a uma maior taxa de transferência de calor que as da zona de estagnação. As amostras foram coletadas do leito em tempos pré-determinados exatamente dessa região central. Isto explica a diminuição na taxa de umidade das partículas medida durante os ensaios depois de atingir o ponto máximo. O ponto identificado com a seta corresponde o valor máximo de umidade das partículas atingido dentro do leito e o correspondente para a queda de pressão. As demais curvas de evolução realizada para outras vazões de suspensão e pressão de atomização encontram-se no ANEXO A e apresentam comportamentos semelhantes aos aqui exemplificados.



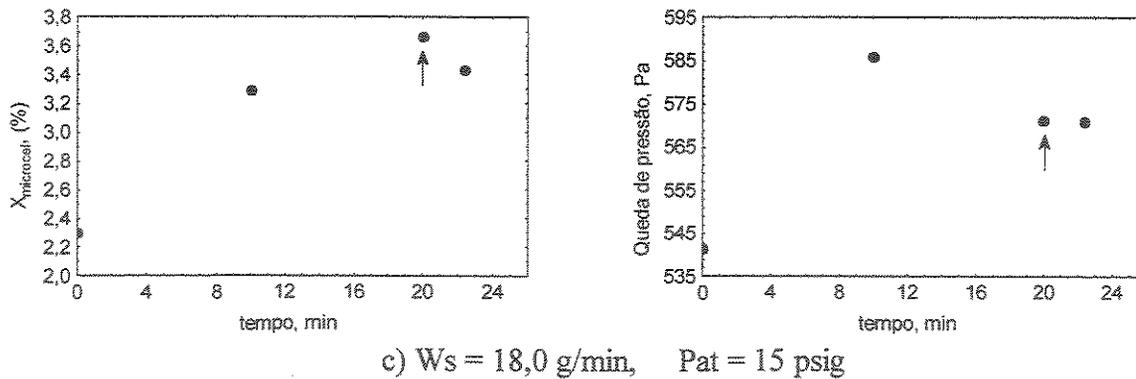


Figura 4.10 – Evolução da umidade e da queda de pressão em função do tempo para cada vazão de suspensão e pressão de atomização trabalhada.

À medida que a umidade vai aumentando no leito de partículas, a movimentação do leito diminui até atingir um valor máximo de umidade suportada, para o qual o leito extingue. Isto ocorre porque o teor de água das partículas aumenta tornando o leito mais pesado, oferecendo uma maior resistência ao ar de fluidização. Dessa forma, à medida que as partículas vão sendo recobertas durante o processo de recobrimento, há um aumento na massa seca de sólidos no leito, devido a uma camada mais espessa de recobrimento que vai se formando sobre as partículas de MICROCEL. Com isso, o leito tende a suportar um teor menor de água no decorrer do processo. Assim, para cada valor da vazão de suspensão a ser atomizada no leito, o tempo de processo com estabilidade fluidodinâmica diminui ou aumenta, dependendo também da pressão de atomização utilizada.

4.4 – Resultados do planejamento fatorial completo 3^2

A análise dos resultados obtidos para eficiência (η), crescimento (χ), índice de aglomerados (Agl) e saturação instantânea (S') foi realizada através de métodos estatísticos, com a utilização do programa STATISTICA®, de acordo com o planejamento fatorial completo 3^2 , cuja matriz estatística esta resumida na Tabela 4.5. Na tabela são apresentadas as variáveis codificadas e as variáveis resposta para os ensaios de recobrimento de forma contínua. Foi realizada a análise de efeitos para cada resposta e a possibilidade de obter um modelo estatisticamente significativo e preditivo para estas respostas. Cada resposta foi analisada separadamente.

Tabela 4.5 – Resultados do planejamento fatorial 3^2 – Matriz das variáveis independentes e variáveis resposta para os ensaios de recobrimento.

Exp	P_{at} (kPa)	W_s (Kg/s)	η (%)	χ (%)	Agl (%)	S^* (min ⁻¹)
01	-	-	58,1	0,89	2,42	0,005370
03	-	0	52,8	1,62	2,23	0,010690
07	-	+	91,2	4,58	0,94	0,016828
02	0	-	63,8	1,14	6,28	0,006310
04	0	0	89,4	3,09	0,43	0,011951
05	0	+	70,8	3,59	0,41	0,016687
08	+	-	51,0	1,08	1,36	0,006438
09	+	0	99,7	2,90	0,38	0,010023
06	+	+	76,8	4,37	1,08	0,016783

Analisando-se a influência da pressão de atomização no processo de recobrimento verificou-se que para os experimentos com a pressão de atomização de 10 psig, apresentados na Tabela 4.6, e vazões de 6,4 e 11,0 g/min, os valores de eficiência de recobrimento foram próximos à média de 55,5 %. Já na condição de máxima vazão, 18,0 g/min, a eficiência do processo foi bem superior aos valores obtidos para as vazões menores. Este aumento na eficiência pode estar relacionado com a interação das variáveis pressão de atomização e vazão de suspensão. Em vazões maiores o tamanho das gotas formadas são maiores. Quando as gotas são maiores, uma maior quantidade de suspensão chega de uma vez na superfície da partícula, além disso, evita a secagem prematura das gotas, não ocorrendo perdas por elutriação, favorecendo o crescimento (χ) da partícula. Em relação ao crescimento relativo de partículas os resultados foram satisfatórios, tanto para o tempo total de processo, bem como para o tempo de 20 min de recobrimento, apresentando valores que variam de 1 a 5 % e de 0,89 a 4,58 %, respectivamente.

De acordo com o crescimento normalmente observado nos processos de recobrimento por filme, o limite é 6 %. Ocorreu uma diminuição do tempo de processo com o aumento da vazão de suspensão verificada nas Tabelas 4.6, 4.7 e 4.8. Essa diminuição é justificável, à medida que o leito vai sendo alimentado com a suspensão, o comportamento fluidodinâmico é prejudicado com a perda de movimentação das partículas. Nas Tabelas

4.6, 4.7 e 4.8 são apresentados os valores de crescimento para o tempo total de processo e para um tempo fixo de 20 min de recobrimento.

Tabela 4.6 – Comparação de resultados para pressão de atomização de 10 psig.

tempo total (min)	P _{at} (psig)	W _s (g/min)	η (%)	χ (%)	Arraste (g)	χ (%) com 20 min
60	10	6,4	58,1	2,66	3,76	0,89
24,4	10	11,0	52,8	1,98	1,03	1,62
22,1	10	18,0	91,2	5,06	3,58	4,58

A Tabela 4.7 mostra que para a pressão de 15 psig, a eficiência (η) foi similar para as vazões de 6,4 e 18,0 g/min, em torno de 67 % em média, enquanto que para a vazão de 11,0 g/min a eficiência aumentou para 90 %, sendo que o maior arraste se deu para a vazão de 6,4 g/min que ficou em torno de 3,6 g contra 0,94 e 2,8 g. O crescimento das partículas foi maior para o maior tempo de processo 96 min, com a menor vazão, 6,4 g/min. Para as vazões de 11,0 e 18,0 g/min, o crescimento (χ) das partículas foi equivalente e o tempo de processo estável foi bastante próximo. Para o tempo fixo de 20 min de recobrimento, o crescimento relativo da partícula praticamente triplicou quando a vazão de suspensão passou de 6,4 para 11,0 g/min.

Tabela 4.7 – Comparação de resultados para pressão de atomização de 15 psig.

tempo total (min)	P _{at} (psig)	W _s (g/min)	η (%)	χ (%)	Arraste (g)	χ (%) com 20 min
96	15	6,4	63,8	5,48	3,63	1,14
26,3	15	11,0	89,4	4,07	0,94	3,09
23,3	15	18,0	70,8	4,03	2,76	3,59

Para uma pressão de atomização de 20 psig, conforme demonstrado na Tabela 4.8, o crescimento (χ) da partícula sofreu uma influência significativa da vazão, apesar dos diferentes tempos de processo. O mesmo foi observado para o tempo fixo de 20 min. A vazão em seu menor nível 6,4 g/min, associada a pressão em seu mais alto nível 20 psig, resultou em diâmetros de gotas menores de aspersão favorecendo a secagem dessas gotas antes de atingir a partícula. Com pouco líquido e mais ar de atomização ocorre uma turbulência na superfície do leito, provocando um aumento significativo do arraste de partículas. A condição de vazão de 6,4 g/min e pressão de 20 psig resultou em uma redução

da eficiência, um maior arraste e um tempo de processo maior em relação às outras vazões, de 11,0 e 18,0 g/min, onde a eficiência (η) foi de 99,7 % e 76,8 %, respectivamente.

Tabela 4.8 – Comparação de resultados para pressão de atomização de 20 psig.

tempo total (min)	P_{at} (psig)	W_s (g/min)	η (%)	χ (%)	Arraste (g)	χ (%) com 20 min
88	20	6,4	51,0	4,76	20,85	1,08
30,0	20	11,0	99,7	4,35	2,51	2,90
22,4	20	18,0	76,8	5,09	3,73	4,37

Com a análise dos resultados obtidos foi possível verificar que:

- para vazão de 6,4 g/min o leito suportou 60 min de processo, o dobro do tempo obtido para as vazões de 11,0 e 18,0 g/min com a mesma pressão de atomização; o crescimento da partícula é proporcional à eficiência.
- para vazão de 11,0 g/min, com um tempo de processo estável praticamente igual para as diferentes pressões trabalhadas, a eficiência variou de 52,8 % a 99,77 %, sendo também o crescimento das partículas proporcional à eficiência e tendo nesse caso os menores arrastes.
- para vazão de 18,0 g/min, o tempo de processo é bem menor comparado com as outras vazões de 6,4 e 11,0 g/min, independe da pressão de atomização; o crescimento relativo das partículas é proporcional ao tempo de processo e independente da pressão de atomização e da eficiência. A eficiência foi maior para condição de baixa pressão de atomização.
- Os valores encontrados para o crescimento das partículas, fixando o tempo de processo em 20 min, mostraram-se satisfatórios, de acordo com a literatura que é até 6 % para recobrimentos do tipo filme, variando de 0,89 a 4,58 %, apresentando um maior crescimento para a vazão de 18,0 g/min.
- O arraste listado nas Tabelas 4.6, 4.7 e 4.8, é justificado pela aproximação do colapso do leito, com a formação de caminhos preferenciais. O ar de fluidização atravessa o leito por esses canais preferenciais formados com maior velocidade, levantando as partículas até o topo do leito. Quando as bolhas explodem na superfície do leito, bruscamente em forma de pulso, partículas são lançadas até a

altura máxima do leito e ao coincidirem com a saída do ciclone, são arrastadas facilmente.

Resumindo, a operação do leito fluidizado em condições de estabilidade fluidodinâmica é otimizado para a vazão de suspensão e pressão de atomização no ponto central, verificando-se a predominância do efeito da vazão de suspensão, que, para as dimensões e condições deste trabalho, foi de 11,0 g de suspensão/min.

4.4.1 - Análise estatística para as respostas do planejamento.

Eficiência do processo. η

Os efeitos das variáveis independentes na resposta eficiência do processo estão apresentados na Tabela 4.9, com intervalo de confiança de 90 %. Os efeitos são considerados estatisticamente significativos quando seus valores forem superiores ao desvio do efeito, ou quando os limites de confiança apresentarem os sinais contrários.

Como apresentado na Tabela 4.9, a estimativa dos efeitos para a eficiência do processo apresentou efeitos negativos na variável resposta para a vazão de suspensão (W_s) e pressão de atomização (P_{at}), na forma quadrática, e para a interação ($P_{at} \cdot W_s$), na forma linear. Os efeitos positivos na eficiência são dados pela pressão de atomização (P_{at}), e a vazão de suspensão (W_s), na forma linear, entretanto estes efeitos não se apresentaram estatisticamente significativos no processo, para um intervalo de 90 % de confiança.

Tabela 4.9 – Estimativa dos efeitos para a eficiência do processo.

Variáveis Independentes	Coefficientes de regressão	P	Desvio padrão	Limite de confiança - 90 %	Limite de confiança + 90 %
Média	82,6778	0,0140	15,9717	45,0905	120,2650
P_{at} (L)	4,2333	0,6616	8,7481	-16,3540	24,8207
P_{at} (Q)	-3,0667	0,8526	15,1521	-38,7250	32,5917
W_s (L)	10,9833	0,2982	8,7481	-9,6040	31,5707
W_s (Q)	-12,0167	0,4857	15,1521	-47,6750	23,6417
P_{at} (L)* W_s (L)	-1,8250	0,8756	10,7142	-27,0393	23,3893

O diagrama de Pareto Figura 4.11 demonstra o resultado obtido.

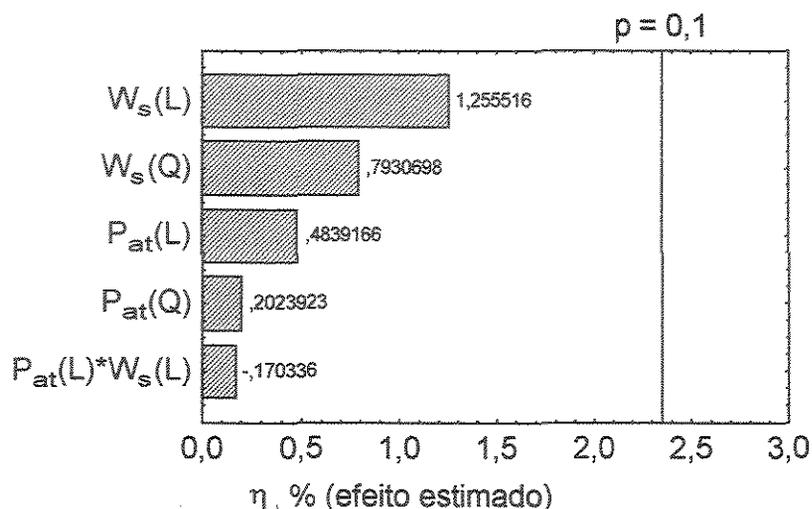


Figura 4.11 – Diagrama de Pareto dos efeitos para a eficiência do processo.

Crescimento de partículas. γ

Observa-se, na Tabela 4.10 e Figura 4.12 pelo digrama de Pareto, que somente a variável independente vazão de suspensão apresentou efeito significativo sobre a variável resposta crescimento das partículas, para um intervalo de confiança de 90 %. O termo estatisticamente significativo está grifado na Tabela 4.10. A pressão de atomização (P_{at}), apresenta efeito positivo para a forma linear e negativo para a quadrática. A vazão de suspensão (W_s) apresenta efeito positivo tanto para a forma linear como para a forma quadrática, a interação das variáveis independentes ($P_{at} \cdot W_s$), na forma linear, apresenta efeito negativo para o crescimento relativo.

Tabela 4.10 - Estimativa dos efeitos para o crescimento de partículas.

Variáveis Independentes	Coefficientes de regressão	P	Desvio padrão	Limite de confiança - 90 %	Limite de confiança + 90 %
Média	2,5589	0,0174	0,5357	1,2981	3,8197
$P_{at}(L)$	0,2100	0,5259	0,2934	-0,4806	0,9006
$P_{at}(Q)$	-0,0333	0,9518	0,5082	-1,2294	1,1628
$W_s(L)$	1,5717	0,0127	0,2934	0,8811	2,2622
$W_s(Q)$	0,0717	0,8968	0,5082	-1,1244	1,2678
$P_{at}(L)*W_s(L)$	-0,1000	0,7989	0,3594	-0,9458	0,7458

Verifica-se através do diagrama de Pareto na Figura 4.12, a forte influência da vazão de suspensão em relação aos outros parâmetros. Observa-se também que $W_s(Q)$, $P_{at}(L)$ e $P_{at}(Q)$ não apresentaram efeitos significativos, bem como a interação das variáveis na forma linear. A Tabela 4.11 apresenta a avaliação do modelo estatístico realizado pela análise de variância (ANOVA) obtida para o crescimento de partículas, segundo BRUNS *et al.* (2002).

Tabela 4.11 – Análise de variância – crescimento relativo de partículas no processo de recobrimento.

Fonte de Variação	Soma Quadrática (SQ)	Nº de Graus de Liberdade	Média Quadrática (MQ)
Regressão (R)	14,82	1	14,82
Resíduo (r)	1,87	7	0,27
Total (T)	16,69	8	

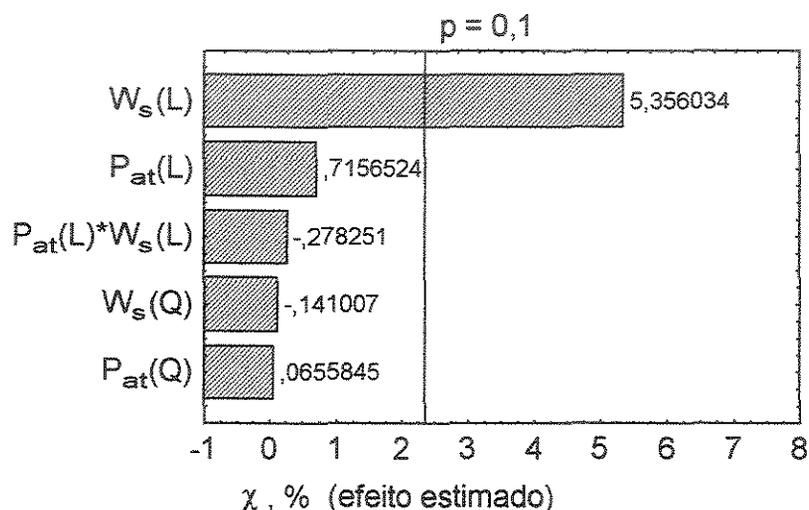


Figura 4.12 – Diagrama de Pareto dos efeitos para o crescimento de partícula.

O modelo estatístico obtido para correlacionar a variável com a resposta só foi possível para um modelo de primeira ordem, onde somente o ajuste linear foi significativo. A Equação 4.1 corresponde ao modelo estatístico codificado para a resposta crescimento relativo das partículas.

$$\chi = 2,58 + 1,57.W_s \quad (4.1)$$

A percentagem de variação explicada pela regressão em torno da média foi de 88,81 %. A qualidade do ajuste é de 87,21 % o que significa que há um bom ajuste entre os

valores observados e os preditos pela correlação. O valor de F obtido pelo modelo foi de 1,99 vezes o valor do ponto da distribuição F a um nível de confiança de 90 %. De acordo com BRUNS *et al.* (2002), o modelo pode ser considerado preditivo quando o valor de F calculado for superior a três vezes o valor de F tabelado, o que não aconteceu no caso da equação obtida. A complexidade da operação de recobrimento com a conseqüente dificuldade de controlar o processo e a interferência de fatores não analisados podem ser a causa do modelo obtido ser não preditivo.

A comparação entre os valores experimentais e os calculados através do modelo de primeira ordem em ajuste linear para o crescimento de partículas é ilustrado na Figura 4.13. Verifica-se que o modelo ajustado aos dados do crescimento apresenta uma boa distribuição dos pontos em torno da reta ideal, sem tendências.

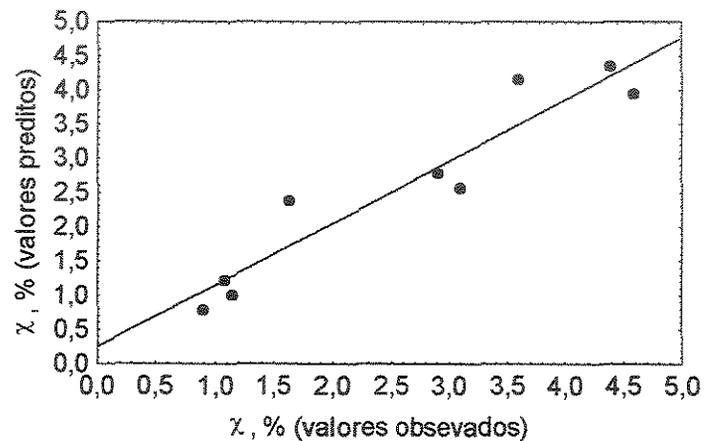


Figura 4.13 – Valores observados em função dos valores preditos - χ (Crescimento).

A Figura 4.14 apresenta uma distribuição aleatória dos resíduos, indicando que o modelo representa adequadamente as variações do crescimento relativo das partículas.

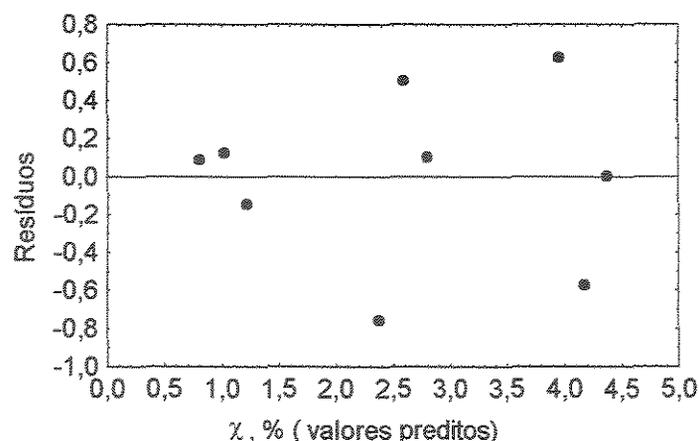


Figura 4.14 – Distribuição dos resíduos - χ (Crescimento).

Índice de aglomerados. Agl

Os efeitos das variáveis independentes na resposta aglomerados estão sumarizados na Tabela 4.12. Verifica-se também para essa variável resposta, que as variáveis independentes W_s e P_{at} não influenciam significativamente a variável resposta analisada. Os efeitos na variável resposta foram negativos para a pressão de atomização (P_{at}), na forma quadrática e linear, e para a vazão de suspensão (W_s), na forma linear. Os efeitos positivos na aglomeração são dados pela vazão de suspensão (W_s), na forma quadrática e pela interação ($P_{at} \cdot W_s$), na forma linear. O diagrama de Pareto da Figura 4.15 demonstra que não houve significância estatística para um intervalo de 90 % de confiança.

Tabela 4.12 – Estimativa dos efeitos para o índice de aglomeração.

Variáveis Independentes	Coefficientes de regressão	P	Desvio padrão	Limite de confiança - 90 %	Limite de confiança + 90 %
Média	1,6611	0,3524	1,5116	-1,8985	5,2207
P_{at} (L)	-0,4617	0,6162	0,8285	-2,4113	1,4880
P_{at} (Q)	-0,9717	0,5469	1,4349	-4,3486	2,4053
W_s (L)	-1,2717	0,2224	0,8285	-3,2213	0,6780
W_s (Q)	1,0683	0,5106	1,4349	-2,3086	4,4453
P_{at} (L)* W_s (L)	0,3000	0,7868	1,0147	-2,0879	2,6878

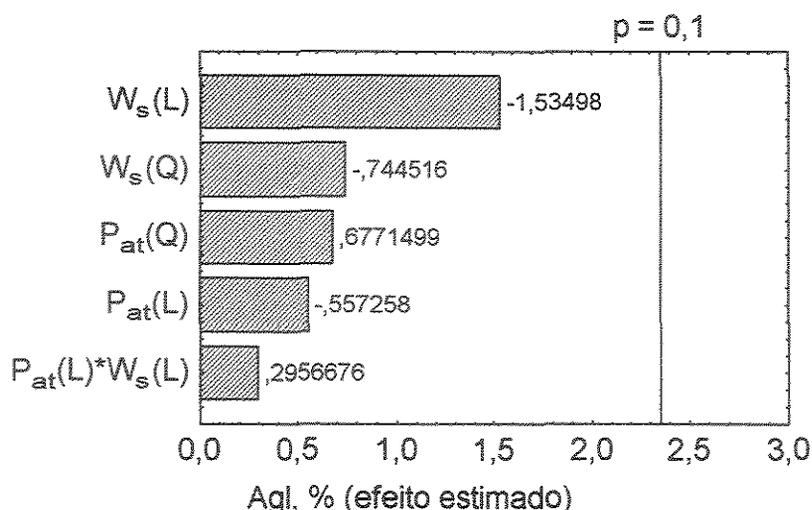


Figura 4.15 – Diagrama de Pareto dos efeitos para os aglomerados.

Saturação Instantânea, S'

A Tabela 4.13 apresenta os efeitos das variáveis independentes na resposta saturação instantânea, para um intervalo de confiança de 90 %, onde o termo significativo estatisticamente está grifado. Como apresentado na Tabela 4.13, a estimativa dos efeitos para a saturação instantânea apresentou efeitos positivos para a vazão de suspensão (W_s), na forma linear e quadrática, e para a pressão de atomização (P_{at}), na forma linear e efeitos negativos para a pressão de atomização (P_{at}), na forma quadrática e a interação ($P_{at} \cdot W_s$), na forma linear.

A significância dos efeitos combinados e individuais das variáveis independentes é apresentada no gráfico de Pareto, conforme Figura 4.16. Os efeitos estatisticamente significativos para a saturação instantânea estão à direita da reta vertical indicativa do limite de confiança de 90 %.

Tabela 4.13 – Estimativa dos efeitos para a saturação instantânea.

Variáveis Independentes	Coefficientes de regressão	P	Desvio padrão	Limite de confiança - 90 %	Limite de confiança + 90 %
Média	0,0113	0,0002	0,0005	0,0101	0,0125
$P_{at}(L)$	0,0001	0,8498	0,0003	-0,0006	0,0007
$P_{at}(Q)$	-0,0006	0,2971	0,0005	-0,0018	0,0005
$W_s(L)$	0,0053	0,0003	0,0003	0,0047	0,0060
$W_s(Q)$	0,0005	0,3777	0,0005	-0,0007	0,0017
$P_{at}(L) * W_s(L)$	-0,0003	0,4874	0,0004	-0,0011	0,0006

Através do diagrama de Pareto na Figura 4.16, pode-se verificar a forte influência da vazão de suspensão em relação aos outros parâmetros. Observa-se também que $P_{at}(L)$, $P_{at}(Q)$ e $W_s(Q)$ não apresentaram efeitos significativos bem como a interação na forma linear, com os resultados obtidos.

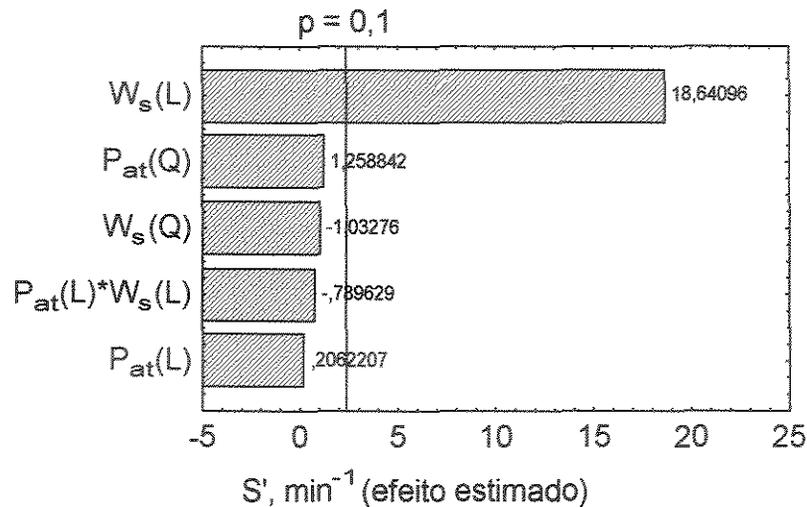


Figura 4.16 – Diagrama de Pareto dos efeitos para a saturação instantânea.

Embora a análise feita para a variável saturação instantânea tenha apresentado efeito estatisticamente significativo somente para a variável independente (W_s), optou-se por não se trabalhar com um modelo polinomial em base estatística, já que esse resultado já é definido nas equações 3.9 e 3.10, ou seja, a análise serviu para confirmar a teoria e não foi obtida influência significativa da pressão de atomização.

Da análise estatística realizada e da avaliação das tendências dos efeitos das variáveis independentes nas respostas analisadas pode-se sumarizar:

- as melhores condições de trabalho são obtidas para o ponto central, onde ocorreu o menor valor de perda por arraste e uma eficiência de 80,63 % em média;
- o aumento da vazão de suspensão associado à baixa pressão de atomização favorece o crescimento das partículas, obtendo-se uma eficiência satisfatória, uma baixa formação de aglomerados e alta saturação instantânea do leito;

- para obter valores satisfatórios de eficiência de processo com baixa taxa de aglomerados e um crescimento relativo de partículas regular, uma das alternativas é se trabalhar com a atomização de suspensão de forma intermitente;
- a dificuldade em controlar o processo de recobrimento com atomização contínua em condição fluidodinâmica estável é devido a interferência de outros fatores como: formação de pontes líquidas, saturação do leito, forças de adesão, forças capilares e etc.

4.5 – Análise via microscópio óptico

Para esta análise foram escolhidos os experimentos 2, 7 e 9, por apresentarem melhores resultados na eficiência e no crescimento relativo das partículas. As Figuras 4.17, 4.18 e 4.19 representam fotografias de partículas recobertas de celulose microcristalina MC - 500 na faixa de tamanho analisada e os aglomerados obtidos nos respectivos experimentos. As imagens foram realizadas através de um microscópio óptico com aumento de até 40X acoplado a um sistema de aquisição de imagem, ScanPro. As imagens obtidas, Figuras 4.17 – 4,19 (a), revelam que as partículas de celulose microcristalina MC-500 recobertas apresentam uma boa aparência, recobrimento individual e completa cobertura das partículas.

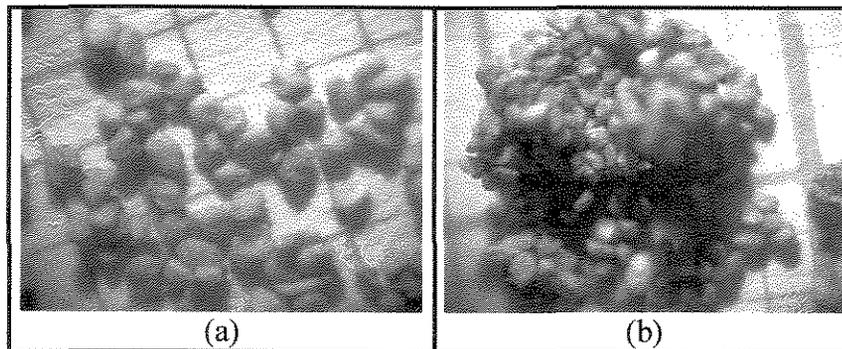


Figura 4.17 – Fotografia óptica das partículas de celulose microcristalina MC-500 para o experimento 2, (a) partículas recobertas; (b) aglomerados formados (dimensão aproximada 5 x 4,5 mm).

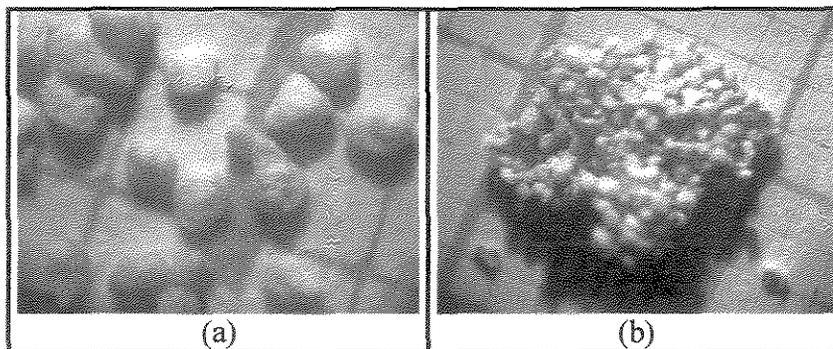


Figura 4.18 – Fotografia óptica das partículas de celulose microcristalina MC-500 para o experimento 7, (a) partículas recobertas; (b) aglomerados formados (dimensão aproximada 5,2 x 3,8 mm).

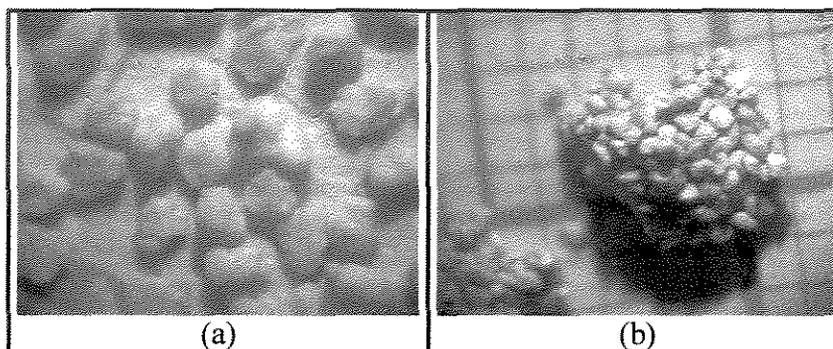


Figura 4.19 – Fotografia óptica das partículas de celulose microcristalina MC-500 para o experimento 9, (a) partículas recobertas; (b) aglomerados formados (dimensão aproximada 3,36 x 2,90 mm).

O crescimento das partículas ocorreu por formação de camadas concêntricas sobrepostas, da suspensão recobridora em torno do núcleo (celulose microcristalina). Esse mecanismo pode ser verificado na Figura 2.12 (KADAM, 1991).

Os aglomerados apresentados nas Figuras 4.17 - 4.19 (b) foram formados praticamente na zona de aspersão, onde as partículas têm um maior contato com a suspensão polimérica aspergida sobre o leito de partículas. Os aglomerados são provenientes de partículas menores, que aderem umas às outras, através das pontes líquidas. A solidificação das pontes líquidas pelo ar de secagem conduz à formação de grandes

aglomerados. A resistência da ponte depende da força capilar, além de outras forças como: força coesiva e de van der Waals.

Vários trabalhos (PONTE *et al.*, 2001; SCHNEIDER e BRIDGWATER, 1993; SEVILLE e CLIFT, 1984; SEVILLE *et al.*, 2000), chamam a atenção para essas forças, como as principais contribuintes para a formação de aglomerados. A higroscopicidade da partícula, também contribui, tornando-a mais susceptível a formação de tais aglomerados, (PASSOS e MASSARANI, 2000).

CAPÍTULO 5

CONCLUSÕES E SUGESTÕES

5.1 – Conclusões

Pelas análises feitas durante os experimentos e com base nos resultados apresentados e discutidos pode-se concluir que:

- As curvas fluidodinâmicas obtidas experimentalmente para as partículas sem recobrimento, com cargas variando de 400 a 1000 g, apresentaram um comportamento similar, típico para leitos fluidizados, conforme descrito na literatura.
- Para o estudo fluidodinâmico com o ar de atomização, notou-se que a influência é praticamente nula, para a faixa de pressão estudada, de 10 a 20 psig, na queda de pressão do leito. No entanto, o ar de atomização auxiliou na movimentação das partículas fazendo com que houvesse uma maior mistura entre elas.
- A umidade das partículas de celulose microcristalina MC – 500 mostrou-se influente durante o processo de recobrimento, reduzindo a mistura das partículas no leito e reduzindo também a temperatura na zona de aspersão. O aumento de umidade durante o processo causa a defluidização do leito, com aparecimento de zonas estagnadas junto à placa distribuidora contribuindo para a formação de caminhos preferenciais e o total colapso.
- No processo de recobrimento com atomização contínua, a menor vazão de suspensão adotada, de 6,4 g/min, resultou em um maior tempo de processo; mais que o dobro do tempo obtido para as vazões de 11,0 e 18,0 g/min, obtendo-se um crescimento proporcional à eficiência. Por outro lado, houve uma maior quantidade de arraste e uma menor eficiência, de 51 a 63,8 %, dependendo da pressão de atomização trabalhada.
- Os melhores resultados foram obtidos para a vazão de 18,0 g/min, onde obteve-se uma taxa de crescimento satisfatória; em contrapartida o tempo de processo foi bastante reduzido, devido a saturação do leito ser mais rápida, pois a quantidade de suspensão aspergida sobre o leito é três vezes maior que a menor vazão analisada.
- Com relação ao processo de recobrimento com atomização contínua, as melhores condições de operação para as faixas analisadas neste trabalho foram para a vazão

intermediária de 11,0 g/min e qualquer pressão de atomização. Nessas condições ocorreu o menor valor de perda por arraste e uma eficiência satisfatória, 80,63 % em média.

- Na análise estatística não se obteve significância dos efeitos individuais e combinados das variáveis independentes estudadas para eficiência (η) e aglomerados (Agl).

- Para vazões de suspensão baixas e pressão de atomização altas obteve-se um maior tempo de processo, porém, para as vazões médias e altas e qualquer pressão, o tempo foi menor. Conclui-se que a vazão de suspensão é a variável importante no processo de recobrimento, sendo o fator determinante para a saturação do leito e influenciando diretamente no tempo de processo.

- No processo de recobrimento de celulose microcristalina MC – 500, em leito fluidizado com a alimentação da suspensão de forma contínua, o tempo de processo depende da vazão de suspensão (W_s) e a pressão de atomização (P_{at}) a que é submetido.

- O aumento do grau de saturação do leito fluidizado influencia na fluidodinâmica, fazendo com que as partículas defluidizem, levando-as ao empacotamento e conseqüentemente ao colapso do leito.

- Constatou-se que a defluidização do leito está relacionada com a umidade das partículas e que ocorre uma diminuição da queda de pressão do leito quando as partículas atingem um teor de água, máximo (umidade). Verifica-se uma diminuição no conteúdo de umidade acompanhada pela diminuição da queda de pressão, ocorrendo logo em seguida o colapso do leito de partículas.

- Os aglomerados, indesejáveis no processo de recobrimento analisado, formavam na zona de aspersão, com agregação de partículas e suspensão logo abaixo do bico atomizador e aumentavam à medida que as partículas chegavam a essa região. Essa agregação, ao tornar-se pesada, caía dentro do leito contribuindo ainda mais para a formação de aglomerados.

- As partículas tiveram um recobrimento liso e uniforme partícula a partícula, como foi constatado na análise microscópica. O crescimento das partículas ocorreu por formação de camadas sobrepostas, da suspensão recobridora em torno das partículas de celulose microcristalina.

- O processo de recobrimento de forma contínua só é recomendado para baixas vazões em torno de 6,4 g de suspensão/min. Para vazões de suspensão acima de 6,4 g/min, ocorre um

rápido aumento na umidade das partículas no leito, provocando uma instabilidade na fluidização, causando o empacotamento e induzindo ao colapso com um menor tempo de processo a cada aumento de vazão.

5.2 – Sugestões para trabalhos futuros

Para uma melhor avaliação e uma melhor compreensão do processo de recobrimento em leito fluidizado, sugere-se:

1. Testar a fluidodinâmica das partículas no processo de recobrimento com a introdução de um tubo interno, com o objetivo de melhorar a movimentação das partículas;
2. Acompanhar a umidade das partículas dentro do leito, em diversos pontos de amostragem e tentar identificar com maior precisão o colapso do leito;
3. Trabalhar com agitação mecânica ou leito vibro-fluidizado para reduzir as perdas por aglomeração e aumentar a região de regime estável com a saturação, de forma a controlar o colapso do leito;
4. Criar um mecanismo para inibir a formação de zonas mortas junto à placa distribuidora, como por exemplo colocar recheios na câmara *plenum*;
5. Testar novas placas perfuradas como forma de evitar a formação de caminhos preferenciais e zonas mortas;
6. Acompanhar os testes de recobrimento com um sistema de aquisição de dados on-line.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALTAF, S.A., HOAG, S.W., AYRES, J.W., Beads compact – I. Effect of compression on maintenance of polymer coat integrity in multi-layered bead formulations. *Drug Development and Industrial Pharmacy*, vol. 24 (8), p. 737-746, 1998.

ARAI, N. e SUGIYAMA, S.J. (1974) in STRUMILLO, C. and KUDRA, T. *Drying: Principles, applications and design*. Gordon and Breach Science Publishers S.A., Poland, 448p, 1986.

ARAI, N., HORI, I., HASATAMI, M. e SUGIYAMA, S. (1980). in STRUMILLO, C. and KUDRA, T. *Drying: Principles, applications and design*. Gordon and Breach Science Publishers S.A., Poland, 448p, 1986.

AYUB, G. E. S., Recobrimento de comprimidos em leito de jorro bidimensional: Análise do crescimento e transferência de calor gás-partícula. Dissertação de Mestrado, Faculdade de Engenharia Química/ Unicamp, Campinas, 1993.

BARROS NETO, B. SCARMINIO, I.S e BRUNS, R.E. *Como fazer experimentos: pesquisa e desenvolvimento na ciência e na indústria*. Editora da Unicamp, Campinas, SP, 2ª ed. 401p., 2002.

BECHER, R.D. e SCHLÜNDER, E-U., Wetting and drying processes in fluidized bed granulation consequences on particle growth mechanism. *Proceedings of 10th International Drying Symposium, Drying'96*, v.A, p. 85-92, 1996.

BACKERT, T.E., LEHMANN, K.; SCHMIDT, P.C., Compression of enteric-coated pellets to disintegrating tablets. *International Journal of Pharmaceutics*, vol. 143, p. 13-23, 1996.

CALDWELL, H.C. e ROSEN E. New air suspension apparatus for coating discrete solids. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, vol. 53 (11), p.1387-1391, 1964.

CAPES, C. E. Particle size enlargement, in *Handbook of powder technology*, vol. 1, Elsevier, Amsterdam, p. 28, 1980.

CHANG, R. e RUDNIC, E.M. The Effect of various polymeric coating systems on the dissolution and tableting properties of potassium chloride microcapsules. *International Journal of Pharmaceutics*, vol. 70, p. 261-270, 1991.

CHENG, X.X. e TURTON, R. The uniformity of particle coating occurring in fluidized beds. *AIChE Symposium Series*, vol. 90(301), p.142-151, 1994.

D'AMORE, M. DONSI, G. e MASSIMILLA, L. (1979) (apud). STRUMILLO, C. and KUDRA, T. *Drying: Principles, applications and design*. Gordon and Breach Science Publishers S.A., Poland, 448p, 1986.

DAVIES, W.L. e GLOOR Jr, W.T. Batch production of pharmaceutical granulations in a fluidized bed I: effects of process variables on physical properties of final granulation. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, vol. 60(12), p.1869-1874, 1971.

DEWETTINCK, K., DEROO, L., MESSENS, W. e HUYGHEBAERT, A. Agglomeration Tendency during Top-spray fluidized bed coating with gums. *Lebensm.-Wiss. u. -Technology*, Vol. 31, p.576-584, 1998.

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

FUKUMORI, Y., ICHIKAWA, H., JONO, K., FUKUDA, T. e OSAKO, Y. Effect of additives on agglomeration in aqueous coating with hydroxypropyl cellulose. *Chemical and Pharmaceutical Bulletin*, vol. 41(4), p.725-730, 1993.

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

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

GELDART, D. e BAEYENS, J. The design of distributors for gas-fluidized beds. *Powder Technology*, vol. 42, p. 67-78, 1985.

GUIGNON, B., REGALADO, E., DUQUENOY, A., DOMOULIN, E., Helping to cose operating parameters for a coating fluid bed process. *Powder Technology*, vol 130, p. 193-198, 2003.

GRACE, J.R., Hydrodynamics of gas fluidized beds, fluidized bolilers: design and application, p. 13-30, Pergamon Press, Canada, 1984.

GRACE, J.R., Canadian Journal Chemical Engineering, vol 64, p 353, (1986) in KUNII, D. e LEVENSPIEL, O. "Fluidization Engineering". John Wiley and Sons, Inc., New York, 1991.

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

ICHIKAWA, H., TOKUMITSU, H., JONO, K., FUKUDA, T., OSAKO, Y. e FUKUMORI, Y. Coating of pharmaceutical powders by fluidized bed process. VI. Microencapsulation using blend and composite latices of copoly(Ethyl acrylate-methyl methacrylate-2-hydroxysthyl methacrylate). *Chemical and Pharmaceutical Bulletin*, vol. 42(6), p.1308-1314, 1994.

ILEY, W.J. Effect of particle size and porosity on particle film coating. *Powder Technology*, v.65, p.441-445, 1991.

- KADAM, L. K. granulation technology for bioproducts. CRC – Press, Boston, 336p., 1991.
- KAGE, H., TAKAHASHI, T., YOSHIDA, T., OGURA, H. e MATSUNO, Y. Coating efficiency of seed particles in a fluidized bed by atomization of a powder suspension. *Powder Technology*, vol.86, p.243-250, 1996.
- KLEINBACH, E. e RIEDE, Th. Coating of solids. *Chemical Engineering and Processing*, vol. 34, p.329-337, 1995.
- KUCHARSKI, J. e KMIÉC, A. The effect of process parameters on mass distributions and the efficiency of tablets coatings in a spouted bed – *Drying '88*, vol. II, pp.27-31, 1988.
- KUNIL, D. e LEVENSPIEL, O. “Fluidization Engineering”. John Wiley and Sons, Inc., New York, 1991.
- LINK, K.C. e SCHLÜNDER, E-U. Fluidized Bed Spray Granulation and Film Coating – A new method for the investigation of the coating process on a single sphere. *Drying Technology*, v.15, n.6-8, p.1827-1843, 1997.
- LITSTER, J.D. e SARWONO, R. Fluidized drum granulation: studies of agglomerate formation. *Powder Technology*, v.88, p. 165-172, 1996.
- LOPEZ, M.F.B., sistemas de liberação controlada – estudo de recobrimento aquoso em formas sólidas, comprimidos e microgrânulos, com vista a veiculação de fármacos de ação tuberculostática. Dissertação de Mestrado, Faculdade de Ciências Farmacêuticas/USP, 164p. São Paulo, 1995.
- MAA, Y.-F, NGUYEN, P. e HSU, C.C. Spray-coating of rhDNase on lactose: effect of system design, operational parameters and protein formulation. *International Journal of Pharmaceutics*, vol. 144, p. 47-59, 1996.
- McLAUGHLIN, L.J. e RHODES, M.J. Prediction of fluidized bed behaviour in the presence of liquid bridges. *Powder Technology*, vol. 114, pp.213-223, 2001.
- MEDEIROS, M.F.D. Influência da composição química dos materiais no desempenho do processo de secagem de polpas de frutas em leito de jorro. Tese de Doutorado, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP, 233p. 2001.
- OLIVEIRA, W.P., Recobrimento de partículas em leito de jorro. Dissertação de Mestrado. Pós-graduação em Engenharia Química, UFSCar, São Carlos, 1992.
- OLIVEIRA, W.P., Estudo de secagem de pastas em leito de jorro cônico. Tese de Doutorado, Universidade Federal de São Carlos, São Carlos – SP, 1996.
- OWER, E., PANKHURST, R. C. The measurement of air flow. 5th Edition, Pergamon Press, p.148-183, 1977.

PARKER, D.J, BROADBENT, C.J., FOWLES, P., HAWKESWORTH, McNEIL, P, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A 326 (1993) 592 SEVILLE, J. P. K., WILLETT, C.D., KNIGHT, P.C. Interparticle force in fluidisation: a review. *Powder technology*, nº 113, p 261 – 268, 2000.

PASSOS, M.L., MASSARANI, G., FREIRE, J.T. e MUJUMDAR, A. S. Drying of pastes in spouted beds of inert particles: design criteria and modeling. *Drying Technology*, v.15, n.2, p. 605-624, 1997.

PASSOS, M.L.; MASSARANI, G. Análise das forças coesivas inter-partículas em leitos fluidizados. Anais do XXVIII ENEMP, Teresópolis, p.141-148, 2000.

PASSOS, M.L. e MUJUMDAR, A.S. Effect of cohesive forces on fluidized and spouted beds of wet particles. *Powder Technology*, vol. 110, p. 222-238, 2000.

PASSOS, M.L. et. alli, Spouting and Spout-Fluidization of Dry/Wet Particles in a Two Dimensional Bed. *Proceedings of 6th International Drying SymposiumI*, Versailles ,p.127-136, 1988.

PIETSCH, W. Handbook of powder science and technology – Cap 6: Size enlargement by agglomeration. Second edition, Ed. Fayed, E. F. and Otten, L., Chapman and Hall, New York, 1997.

PONT, V., SALEH, K., STEINMETZ, D. and HÉMATI, M. Influence of the physicochemical properties on the growth of solid particles by granulation in fluidized bed. *Powder Technology* vol 120, pp.97 – 104, 2001.

RHODES C.T. e PORTER S.C. Coating for controlled-release drug delivery systems. *Drug Development and Industrial Pharmacy*, vol. 24(12), p.1139-1154, 1998.

RHODES, M.J.; WANG, X. S.; NGUYEN, STEWART, P and LIFFMAN, K. Use of discrete element method simulation in studying fluidization characteristics: influence of interparticle force. *Chemical Engineering Science*, vol.56, p.69-76, 2001.

ROBINSON, M.J., GRASS, G.M. e LANT, R.J. An apparatus and method for the coating of solid particles. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, vol. 57(11), 1968.

ROCHA, S.C.S. “Aspectos tecnológicos dos processos de recobrimento de partículas”, Tópicos Especiais em Secagem, vol. 1. Capítulo 8, p.295-330, São Carlos, 1992.

ROCHA, S.C.S., Recobrimento de partículas. Notas particulares, 2001.

SAKAI, C.R. e ATAÍDE, C.H. Estudo experimental do recobrimento de esferas em leito fluidizado. *XIII Congresso Brasileiro de Engenharia Química – XIX Interamerican Congress of Chemical Engineering, Anais em CD-ROM*, 2000.

SALEH, K., STEINMETZ, D., HEMATI, M. Experimental study and modeling of fluidized bed coating and agglomeration. *Powder Technology*, vol. 130, p. 116-123, 2003.

SCHNEIDER, T.e BRIDGWATER, J. The stability of wet spouted beds. *Drying Technology*, v.11,n.2, p.277-301, 1993.

SEVILLE, J.P.K. and CLIFT, R. The effect of thin liquid layers on fluidisation characteristics. *Powder Technology*, vol. 37, p. 117 – 129, 1984.

SEVILLE, J.P.K., WILLETT, C.D., KNIGHT, P.C. Interparticle force in fluidisation: a review. *Powder technology*, nº 113, p 261 – 268, 2000.

SEVILLE, J.P.K., TÚZÚN, U., CLIFT, R, *Processing of Particulate Solids*, Blackie Academic, London, 1997 (*apud*) SEVILLE, J. P. K., WILLETT, C.D., KNIGHT, P.C. Interparticle force in fluidisation: a review. *Powder technology*, nº 113, p 261 – 268, 2000.

SILVA,O.S.; ROCHA, S.C.S; *Análise do Crescimento e Formação de Aglomerados no Processo de Recobrimento*, 2002.

SILVA, O.S, *Desenvolvimento do Processo de Recobrimento e Secagem de Microgrânulos em Leito Fluidizado*, Tese de Doutorado, Universidade Estadual de Campinas, Campinas – SP, 140p.

SINGESER, R.E. e LOWENTHAL, W. Enteric filmcoats by the air-suspension coating technique. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, vol. 50(2), p.169-170, 1961.

SMITH, P.G. e NIENOW, A.W. Particle growth mechanisms in fluidised bed granulation – I. *Chemical Engineering Science*, vol. 38 (8), p.1223-1231, 1983.

SPITZNER NETO, P.I e FREIRE, J.T. Medida do grau de saturação de pasta em um leito de jorro. *Anais do XXVIII ENEMP*, Teresópolis, p.149-156, 2000.

SPITZNER NETO, P.I e FREIRE, J.T. Estabilidade do leito de jorro na secagem de pastas. *XXIX Congresso Brasileiro de Sistemas Particulados*, São João Del Rei, 2001.

STRUMILLO, C. and KUDRA, T. *Drying: Principles, applications and design*. Gordon and Breach Science Publishers S.A., Poland, 448p, 1986.

VANECEK, V., NAJMR, S. e HALZAN, K. (1967). (*apud*) STRUMILLO, C. and KUDRA, T. *Drying: Principles, applications and design*. Gordon and Breach Science Publishers S.A., Poland, 448p, 1986.

VERLOOP, J., DENIE, L.H.; HEERTJES, P.M., The residence time of solids in gas-fluidized beds, *Powder Technology*, vol. 2, 32-42, 1968.

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

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

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

WILLET, C.D., Phd Thesis, University of Birmingham, 1999 (*apud*) SEVILLE, J. P. K., WILLETT, C.D., KNIGHT, P.C. Interparticle force in fluidisation: a review. *Powder technology*, nº 113, p 261 – 268, 2000.

YUASA, H.; NAKANO, T. e KANAYA, Y. Supression of agglomeration in fluidized bed coating I. Suppression of agglomeration by adding NaCl. *International Journal of Pharmaceutics*. Vol. 158, p.195-201, 1997.

YUASA, H.; NAKANO, T. e KANAYA, Y. Supression of agglomeration in fluidized bed coating II. Measurement of mist size in a fluidized bed chamber and effect of sodium chloride addition on mist size. *International Journal of Pharmaceutics*. Vol. 178, p.1-10, 1999.

ANEXO A

Evolução da umidade e da queda de pressão em função do tempo para cada vazão de suspensão e pressão de atomização trabalhada.

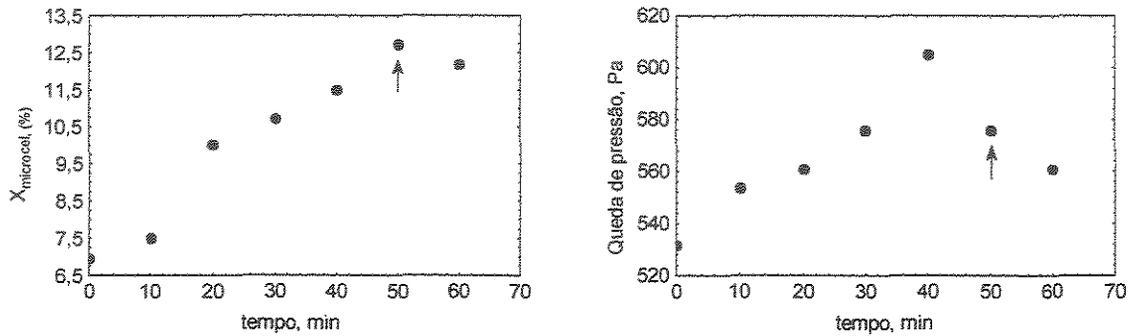


Figura A.1 - $W_s = 6,4$ g/min, $Pat = 10$ psig

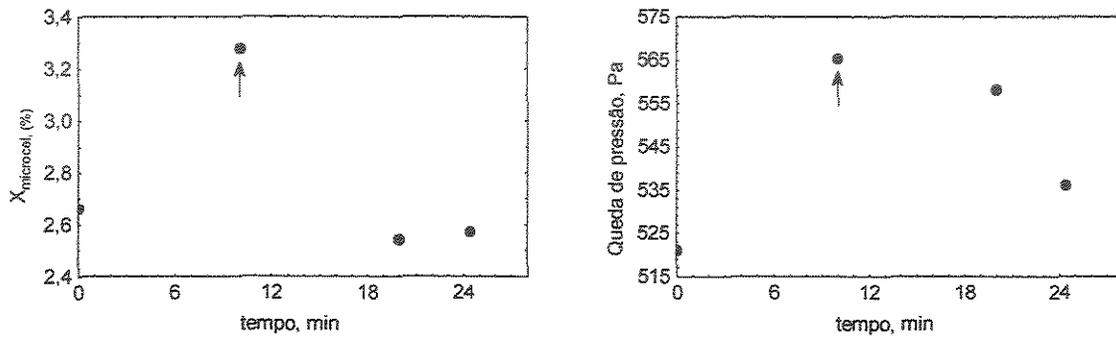


Figura A.2 - $W_s = 11,0$ g/min, $Pat = 10$ psig

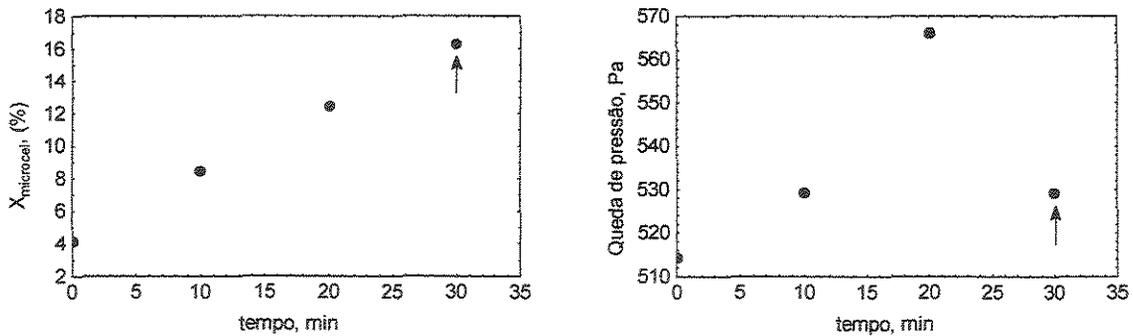


Figura A.3 - $W_s = 11,0$ g/min, $Pat = 20$ psig

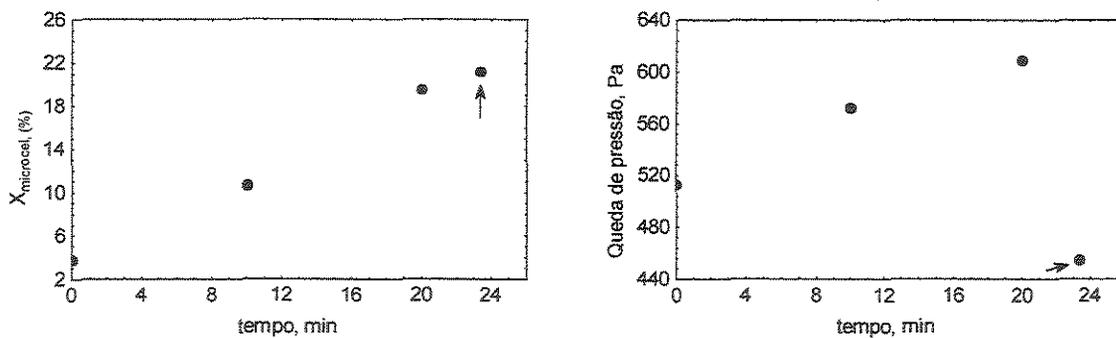


Figura A.4 - $W_s = 18,0$ g/min, $Pat = 20$ psig

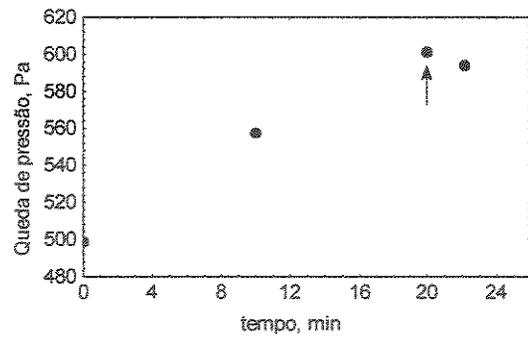
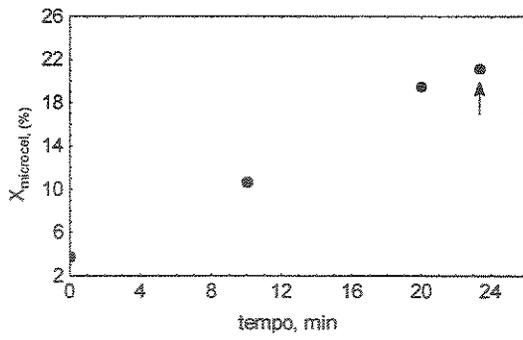


Figura A.5 - $W_s = 18,0$ g/min, Pat = 10 psig

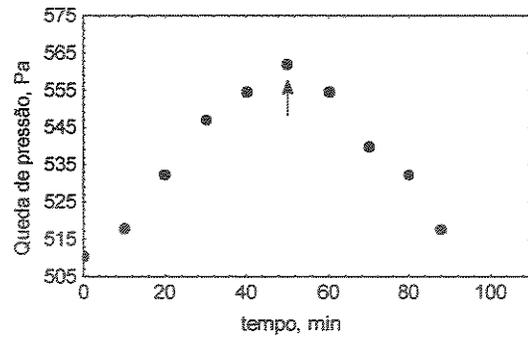
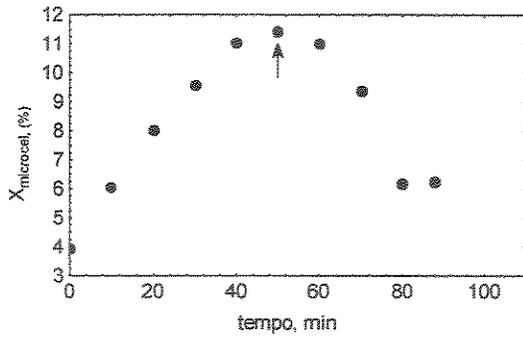


Figura A.6 - $W_s = 6,4$ g/min, Pat = 20 psig