



**UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS  
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DE TECNOLOGIA  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA**

**PAULA GARCIA DA COSTA PETEAN**

**DETERMINAÇÃO DA FORÇA DE ADESÃO ENTRE PARTÍCULA E  
SUPERFÍCIES RUGOSAS ATRAVÉS DA TÉCNICA CENTRÍFUGA**

**SÃO CARLOS  
2014**

**PAULA GARCIA DA COSTA PETEAN**

**DETERMINAÇÃO DA FORÇA DE ADESÃO ENTRE PARTÍCULA E  
SUPERFÍCIES RUGOSAS ATRAVÉS DA TÉCNICA CENTRÍFUGA**

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química da Universidade Federal São Carlos, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de doutor em Engenharia, área de concentração em pesquisa e desenvolvimento de Processos Químicos.

Orientadora: Prof<sup>a</sup> Dr<sup>a</sup> Mônica Lopes Aguiar

**SÃO CARLOS  
2014**

**Ficha catalográfica elaborada pelo DePT da  
Biblioteca Comunitária/UFSCar**

P477df

Petean, Paula Garcia da Costa.

Determinação da força de adesão entre partícula e superfícies rugosas através da técnica centrífuga / Paula Garcia da Costa Petean. -- São Carlos : UFSCar, 2014.  
115 f.


Tese (Doutorado) -- Universidade Federal de São Carlos, 2014.

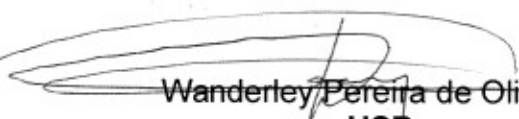
1. Engenharia química. 2. Força de adesão. 3. Técnica centrífuga. I. Título.

CDD: 660 (20<sup>a</sup>)

MEMBROS DA BANCA EXAMINADORA DA TESE DE DOUTORADO DE **PAULA GARCIA DA COSTA PETEAN**, APRESENTADA AO PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA DA UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS EM 28 DE MARÇO DE 2014.

BANCA EXAMINADORA:

  
Mônica Lopes Aguiar  
Orientadora / UFSCar

  
Wanderley Pereira de Oliveira  
USP

  
Nivaldo Aparecido Corrêa  
USP

  
Vádila Giovana Guerra Béttega  
UFSCar

  
Gabriela Cantarelli Lopes  
UFSCar

Dedico este trabalho ao  
Daniel Petean

## AGRADECIMENTOS

Em primeiro lugar a Deus pelo direcionamento dos meus caminhos.

Aos meus pais, José e Margarida, sem eles eu não teria chegado até aqui.

A todos os meus familiares que estão sempre na torcida por mim.

Ao Daniel, por estar sempre ao meu lado me dando forças para superar todos os obstáculos.

À minha orientadora Dra. Mônica Lopes Aguiar, pela orientação, pela oportunidade e ajuda no decorrer deste trabalho.

Ao André Monutti por explicar o funcionamento da técnica centrífuga.

Aos professores, Dr. Wanderley Pereira Oliveira e Dra. Vádila Giovana Guerra Béttega por todas as contribuições durante o andamento do projeto.

Aos colegas do grupo de pesquisa Controle Ambiental I.

Ao Walter Mariano e Marcos por toda ajuda prestada.

Ao Instituto Federal de São Paulo *Campus* Sertãozinho pela concessão do afastamento para qualificação.

A todos que de alguma forma contribuíram para que este trabalho fosse realizado.

## SUMÁRIO

LISTA DE FIGURAS.	I
LISTA DE TABELAS	VIII
LISTA DE SÍMBOLOS	X
RESUMO	XII
ABSTRACT	XIV
1. INTRODUÇÃO .....	01
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA .....	03
2.1. Conceito de adesão.....	03
2.2. Forças envolvidas na adesão entre partículas e um substrato.....	04
2.2.1. As forças de Van der Waals.....	05
2.2.2. As forças eletrostáticas.....	06
2.2.3. As forças de capilaridade.....	07
2.3. Propriedades da partícula.....	09
2.3.1. Tamanho das partículas.....	09
2.3.2. Forma das partículas.....	12
2.3.3. Rugosidade das partículas.....	14
2.4. Modelos mecânicos.....	16
2.4.1. Modelo de Hertz.....	16
2.4.2. Modelo de Jonson-Kendall-Roberts (JKR).....	17
2.4.3. Modelo de Derjaguin-Muller-Toporov (DMT).....	17
2.5. Fatores que afetam a adesão entre partícula e substrato.....	19
2.5.1. Tamanho da partícula.....	19
2.5.2 Umidade relativa do ar.....	20
2.5.3 Rugosidade da superfície.....	20
2.6. Técnicas utilizadas para a medida experimental da força de adesão .....	22
2.6.1 Técnicas de contato.....	22
2.6.1.1. Microscopia de Força Atômica (MFA).....	22
2.6.2 Técnicas sem contato.....	22
2.6.2.1 Separação por campo elétrico.....	23
2.6.2.2 Técnica centrífuga.....	24
3. MATERIAIS E MÉTODOS.....	30
3.1. Equipamentos.....	30
3.1.1. Microcentrífuga (MA – 860, Marconi Equipamentos).....	30
3.1.2. Equipamentos para aquisição e análise de imagens.....	32
3.1.3. Outros equipamentos .....	32

3.2. Material pulverulento.....	34
3.3. Substratos.....	36
3.4. Metodologia da técnica centrífuga.....	40
4. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	46
4.1. Ensaio com o comprimido de celulose microcristalina (substrato).....	46
4.1.1. Desprendimento das partículas com a variação da velocidade angular de desprendimento.....	47
4.1.2. Desprendimento das partículas com a variação da força de adesão.....	49
4.1.3. A relação entre a força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e comprimido de celulose microcristalina e o diâmetro da partícula.....	52
4.2. Ensaio com a membrana filtrante de éster celulose com 0,2 µm de porosidade (substrato).....	57
4.2.1. Desprendimento das partículas com a variação da velocidade angular de desprendimento.....	57
4.2.2. Desprendimento das partículas com a variação da força de adesão.....	59
4.2.3. Relação entre a força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e membrana filtrante e o diâmetro da partícula.....	62
4.3. Comparação da força de adesão entre partículas de celulose microcristalina e os substratos de comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose.....	65
4.4. Comparação dos resultados da força de adesão experimental com os resultados dos modelos teóricos.....	73
4.5. Modelo para aproximar resultados teóricos aos experimentais.....	79
5. CONCLUSÕES.....	91
6. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS.....	93
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	94
APÊNDICE A.....	100
APÊNDICE B.....	105
APÊNDICE C.....	108
APÊNDICE D.....	111



## LISTA DE FIGURAS

Figura 2.1 – Diagrama representativo da força de Van der Waals.....	5
Figura 2.2 – Força de Van der Waals entre (a) duas partículas esféricas diferentes, (b) uma esfera e uma superfície e (c) duas superfícies.....	6
Figura 2.3 – Força de adesão entre uma esfera e uma superfície plana devido a um filme líquido.....	8
Figura 2.4 – Princípio da esfera equivalente: esfera de mesmo volume.....	10
Figura 2.5 – Diâmetros equivalentes para uma mesma partícula.....	10
Figura 2.6 – Duas amostras que poderiam ser consideradas idênticas se apenas a distribuição granulométrica fosse avaliada.....	12
Figura 2.7 – Esquema utilizado para determinar a rugosidade das partículas.....	15
Figura 2.8 – Contato entre uma esfera elástica e uma superfície plana.....	16
Figura 2.9 – Diagrama que ilustra a variação de energia total (trabalho de aderência, $W_A$ ) associado com a separação de uma interface de contato.....	18
Figura 2.10 – Separação por campo elétrico.....	23
Figura 2.11 – Desenho esquemático da força de press-on e da força de spin-off.....	24
Figura 2.12 – (a) desprendimento das partículas na técnica centrífuga, (b) análises das imagens das superfícies, no início e depois de cada rotação.....	25
Figura 3.1 – (a) Microcentrífuga. (b) Detalhe do rotor. (c) porta amostra em formato de tubo.....	31
Figura 3.2 – (a) Diagrama esquemático do porta amostra em formato de tubo, construído em alumínio. (1) tubo, (2) adaptador, (3) substrato, (4) tampa. b) Esquema do eixo de rotação.....	31
Figura 3.3 – Equipamentos utilizados para aquisição e análise das imagens.....	32
Figura 3.4 – Dispersor de pó.....	33
Figura 3.5 – Imagem da celulose microcristalina com ampliação de 3000x obtida no Microscópio Eletrônico de Varredura – Inspect S50 – (LCE – DEMa – UFSCar).....	34
Figura 3.6 – Distribuição granulométrica da celulose microcristalina <i>Sigma-Aldrich</i> ....	35
Figura 3.7 – Substrato membrana filtrante de éster-celulose.....	36
Figura 3.8 – Matriz para a fabricação de comprimidos de celulose microcristalina.....	37

Figura 3.9 – Fotomicrografias obtidas no Microscópio Eletrônico de Varredura (a) Comprimido de celulose microcristalina com ampliação em 2500x (b) Membrana filtrante de éster–celulose com ampliação em 5000x.....	37
Figura 3.10 – Imagens topográficas tridimensionais das superfícies do (a) Comprimido de celulose microcristalina e da (b) Membrana filtrante de éster–celulose obtidas no microscópio de força atômica (DEMa – UFSCar).....	39
Figura 3.11 – Substrato comprimido de celulose microcristalina marcado em quadrantes.....	41
Figura 3.12 – Desenho esquemático do padrão de movimentação do substrato no microscópio adotado ao se tirarem fotos do substrato.....	43
Figura 3.13 – Partículas aderidas na superfície após serem aplicadas velocidades de compressão de (a) 1000 rpm e desprendimento de (b) 1000 rpm (c) 3000 rpm (d) 5000 rpm (e) 7000 rpm e (f) 9000 rpm.....	43
Figura 3.14 – Definição de diâmetro médio do analisador de imagens Image-Pro Plus 7.0.....	45
Figura 4.1 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.....	47
Figura 4.2 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.....	48
Figura 4.3 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.....	48
Figura 4.4 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.....	50
Figura 4.5 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.....	51
Figura 4.6 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.....	51

Figura 4.7 – Força de adesão média em função do diâmetro médio da partícula para o substrato de celulose microcristalina.....	54
Figura 4.8 – Força de adesão em função da velocidade angular de compressão para cada faixa de tamanho para o substrato de celulose microcristalina.....	56
Figura 4.9 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície membrana filtrante de éster celulose em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.....	58
Figura 4.10 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície membrana filtrante de éster celulose em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.....	58
Figura 4.11 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície membrana filtrante de éster celulose em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.....	59
Figura 4.12 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.....	60
Figura 4.13 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.....	61
Figura 4.14 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.....	61
Figura 4.15 – Força de adesão em função do diâmetro médio da partícula celulose microcristalina e o substrato membrana filtrante e o diâmetro da partícula.....	63
Figura 4.16 – Força de adesão em função da velocidade angular de compressão para cada faixa de tamanho para o substrato de membrana filtrante de éster celulose.....	65
Figura 4.17 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os substratos comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose após aplicação de press-on de 1000 rpm.....	66
Figura 4.18 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os substratos comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose após aplicação de press-on de 2000 rpm.....	66

Figura 4.19 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os substratos comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose após aplicação de press-on de 5000 rpm.....	67
Figura 4.20 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato de aço e vidro após aplicação de press-on de 1000 rpm.....	68
Figura 4.21 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato de aço e vidro após aplicação de press-on de 2000 rpm.....	69
Figura 4.22 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato de aço e vidro após aplicação de press-on de 5000 rpm.....	69
Figura 4.23 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato de comprimido celulose microcristalina e substrato de membrana filtrante éster celulose, vidro e aço inoxidável após aplicação de press-on de 1000 rpm.....	70
Figura 4.24 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato comprimido de celulose microcristalina e substrato de membrana filtrante éster celulose, vidro e aço inoxidável após aplicação de press-on de 2000 rpm.....	71
Figura 4.25 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato comprimido de celulose microcristalina e substrato de membrana filtrante éster celulose, vidro e aço inoxidável após aplicação de press-on de 5000 rpm.....	71
Figura 4.26 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio das partículas para substrato de comprimido celulose microcristalina após press-on 1000 rpm.....	74
Figura 4.27 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio das partículas para substrato comprimido celulose microcristalina após press-on 2000 rpm.....	75
Figura 4.28 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio das partículas para substrato comprimido celulose microcristalina após press-on 5000 rpm.....	75

Figura 4.29 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina após press-on 1000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial.....	77
Figura 4.30 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina após press-on 2000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial.....	78
Figura 4.31 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina após press-on 5000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial.....	78
Figura 4.32 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato comprimido.....	87
Figura 4.33 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para o substrato comprimido.....	88
Figura 4.34 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para o substrato comprimido.....	88
Figura 4.35 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato de membrana filtrante.....	89
Figura 4.36 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para substrato de membrana filtrante.....	89
Figura 4.37 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para substrato de membrana filtrante.....	90
Figura A.1 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.....	101

Figura A.2 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.....	102
Figura A.3 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.....	102
Figura A.4 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície da membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.....	103
Figura A.5 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície da membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.....	103
Figura A.6 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície da membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.....	104
Figura B.1 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante após press-on 1000 rpm.....	106
Figura B.2 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante após press-on 2000 rpm.....	107
Figura B.3 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante após press-on 5000 rpm.....	107
Figura C.1 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após press-on 1000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial.....	109
Figura C.2 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após press-on 2000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial.....	110

Figura C.3 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após press-on 5000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial.....	110
Figura D.1 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato de vidro.....	112
Figura D.2 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para o substrato de vidro.....	113
Figura D.3 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para o substrato de vidro.....	113
Figura D.4 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato de aço inoxidável.....	114
Figura D.5 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para o substrato aço inoxidável.....	114
Figura D.6 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para o substrato aço inoxidável.....	115

## LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1 – Valores representativos dos fatores de forma para algumas figuras.....	14
Tabela 3.1 – Caracterização do material particulado.....	36
Tabela 3.2 – Substratos, velocidades angulares de compressão e desprendimento e as faixas de diâmetro de partículas de celulose microcristalina utilizados nos experimentos.....	42
Tabela 3.3 – Tensão superficial dos componentes da adesão.....	45
Tabela 4.1 – Massa média para partícula de celulose microcristalina.....	50
Tabela 4.2 – Resultado final da força de adesão para os testes realizados com comprimido de celulose microcristalina.....	53
Tabela 4.3 – Coeficiente de determinação dos gráficos de força de adesão em função do diâmetro médio das partículas, para o substrato de celulose microcristalina, após a aplicação das forças de compressão de 1000, 2000, e 5000 rpm.....	55
Tabela 4.4 – Resultado final da força de adesão média para os testes realizados com o substrato de membrana filtrante.....	62
Tabela 4.5 – Coeficiente de determinação dos gráficos de força de adesão em função do diâmetro médio das partículas, para o substrato de membrana filtrante, após a aplicação das forças de compressão de 1000, 2000, e 5000 rpm.....	64
Tabela 4.6 – Rugosidade ( $R_a$ ) e módulo de Young ( $E$ ).....	73
Tabela 4.7 – Os valores de $k_t$ dos modelos JKR e DMT.....	79
Tabela 4.8 – Valores de $k_c$ e força de adesão ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de comprimido de celulose microcristalina.....	81
Tabela 4.9 – Valores de $k_c$ e força de adesão ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de membrana filtrante éster celulose.....	82
Tabela 4.10 – Tensão superficial dos componentes da adesão.....	83
Tabela 4.11 – Valores de $k_c$ e força de adesão ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de vidro.....	84
Tabela 4.12 – Valores de $k_c$ e força de adesão ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR para o substrato de aço.....	85



Tabela 4.13 – Os valores de $k_c$ para comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose.....	86
Tabela 4.14 – Os valores de $k_c$ para cada substrato de vidro e aço.....	86

## LISTA DE SÍMBOLOS

### LISTA DE SÍMBOLOS

$A$  = área da partícula

$D$  = distância de separação entre as duas superfícies

$d_{\alpha}$  = Diâmetro aritmético

$d_E$  = Diâmetro externo da partícula

$d_I$  = Diâmetro interno da partícula

$d_p$  = o diâmetro da partícula

$d_{\beta}$  = Pseudo-diâmetro médio da partícula

$E$  = módulo de Young

$f_c$  = frequência de centrifugação

$F_{ad}$  = Força de adesão

$F_c$  = Força de Capilaridade

$F_{es}$  = Força eletrostática

$F_{vdw}$  = Força de Van der Waals

$H$  = constante de Hamaker

$K_E$  = constante de proporcionalidade

$k_c$  = constante que corrige o valor de força de adesão teórica para os valores observados experimentalmente.

$k_t$  = constante teórica que depende apenas do modelo de força de adesão

$m$  = massa das partículas

$P$  = perímetro da partícula.

$P_{convex}$  = perímetro convexo da partícula

$q$  = carga eletrostática da partícula

$r$  = distância entre a superfície do substrato e o eixo de rotação

$r_p$  = raio da partícula

$R_a$  = Rugosidade

$R_r$  = raio da rugosidade

$RH$  = umidade relativa do ar

$V_p$  = volume da partícula

$W_A$  = trabalho de adesão no contato das superfícies

$x_q$  é a distância de separação de carga contrárias

$\theta_1$  = Ângulo de contato entre a esfera e o líquido

$\theta_2$  = Ângulo de contato entre a superfície plana e o líquido

$\theta$  = Ângulo de contato entre a partícula aderida e o líquido

$\omega$  = velocidade angular da centrífuga

$\delta$  = deformação na esfera

$\rho_p$  : densidade da partícula

$\delta$  = deformação na superfície

$\rho_p$  = densidade da partícula

$\sigma_g$  = desvio padrão geométrico

$\gamma_1$  = tensão superficial do material 1

$\gamma_2$  = tensão superficial do material 2

$\gamma_{12}$  = tensão superficial da interface entre 1 e 2, por unidade de área

$\gamma_{s1}$  é a energia livre interfacial sólido-líquido.

## Resumo

Adesão entre pós e superfície desempenha um papel importante em diversas áreas tecnológicas, tais como as operações de secagem, microencapsulação, xerografia e impressão, e processos farmacêuticos e de alimentos. A adesão de partículas em superfícies sólidas é um fenômeno intimamente associado com estudos de higiene industrial e da poluição do ar. A técnica centrífuga para determinar a força de adesão é baseada no desprendimento de partículas de uma superfície do substrato, devido a força centrífuga. Esta técnica utiliza a análise de imagens para determinar o número de partículas aderidas sobre a superfície do substrato. O substrato com as partículas depositadas na sua superfície é rotacionado sucessivamente a velocidades cada vez mais elevadas e depois de cada rotação a uma determinada velocidade o número de partículas restantes na superfície é determinado e para isso utilizou-se o microscópio óptico (Olympus BX60) e o analisador de imagens Image Pro-Plus 7.0. Os resultados são tratados estatisticamente para obter a força de adesão média entre partícula e substrato. O pó utilizado foi uma amostra polidispersa de celulose microcristalina ( $\rho=1,62\text{Kg m}^{-3}$ ). Os materiais utilizados como substratos foram uma membrana filtrante de éster de celulose de 0,2  $\mu\text{m}$  de porosidade, marca Schleicher & Shuell - Filtration Life Science, e um comprimido de celulose microcristalina (Sigma-Aldrich). Utilizou-se, nos experimentos, uma microcentrífuga (MA – 860, Marconi Equipamentos), com velocidade máxima de rotação era de 14000 rpm que continha dois tubos nos quais foram colocados adaptadores, cuja finalidade era de sustentar os substratos contendo o material pulverulento distribuído em sua superfície. Para cada substrato foi aplicada a força de compressão (press-on), de 1000, 2000 e 5000 rpm e para separar as partículas da superfície do substrato foram aplicadas forças de desprendimento (spin-off), de 1000, 3000, 5000, 7000, 9000, 11000, 13000 e 14000 rpm. As faixas de diâmetro das partículas de celulose microcristalina utilizadas nos experimentos foram: 9 – 15, 15,1 – 22, 22,1 – 30, 30,1 – 42 e 42,1 – 60  $\mu\text{m}$ . Constatou-se que a força de adesão aumentou com o acréscimo da velocidade de rotação da centrífuga aplicada na compressão e com o aumento do tamanho das partículas do material pulverulento. Foi possível obter uma relação entre a força de adesão e o diâmetro das partículas aderidas para os substratos analisados. Os resultados experimentais da força de adesão e os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos de Derjaguin, Muller and Toporov (DMT) e Johnson, Kendall and Roberts (JKR) foram comparados e embora o modelo de JKR tenha sido o que mais se aproximou dos resultados experimentais, os valores de força de adesão

teórica foram distantes e superiores aos valores obtidos experimentalmente. Finalmente, foi possível obter constantes de correção  $k_c$  que relacionam a força de adesão teórica com a força de adesão observada experimentalmente.

**Palavras-chave:** Força de adesão. Técnica centrífuga. Superfície rugosa.

## Abstract

Adhesion between powders and surfaces plays an important role in various technological areas and processes, such as paste drying operations, fluidization of fine particles, microencapsulation, xerography and in food and pharmaceutical processes. Adhesion of small particles to solid surfaces is a phenomenon closely associated with industrial hygiene and air pollution studies. The centrifuge technique to determine adhesion force is based on the detachment of particles from a substrate surface due to centrifugal force. In this technique, a substrate with particles deposited on its surface is rotated at successively increasing speeds, and after each rotation at a given speed, the number of particles remaining on the surface is determined. This technique uses imaging analysis to determine the number of adhered particles on the proof disk surface before and after each centrifugation. After applying a specific press-on, images of the substrates containing particles from the pulverized materials were taken by optical microscope Olympus BX60 (Olympus Co. Tokyo Japan and processed by an image analyzer (Image-Pro Plus 7.0). The results were treated statistically to obtain the mean particle adhesive force. The powder used was a polydisperse sample of microcrystalline cellulose ( $\rho=1.62 \text{ kg m}^{-3}$ ). The materials used as substrates were a membrane of cellulose ester  $0.2 \text{ }\mu\text{m}$  of porosity, brand Schleicher & Shuell - Filtration Life Science, and a compressed particulate (tablets) made of microcrystalline cellulose (Sigma-Aldrich). A microcentrifuge that reached a maximum rotation speed of 14000 rpm which contained specially designed centrifuge tubes was used in the adhesion force measurements. Compression speeds (press-on) were applied to each of the experimental runs at 1000, 2000 and 5000 rpm. To detach the particles from the substrate surface, eight cleaning speeds (spin-off) were used. Detachment was done at the centrifugal speeds of: 1000, 3000, 5000, 7000, 9000, 11000, 13000, and 14000 rpm for 1 min. Five particle diameter sizes were studied: 9–15, 15.1–22, 22.1–30, 30.1–42, and 42.1–60  $\mu\text{m}$ . It was observed that the adhesion force increases linearly with the particle diameter, within the range studied and that increased compression speed has an influence on the process of particles detaching. It was possible to obtain a relationship between the adhesion force and diameter of the particles adhered to substrates analyzed

The adhesion force experimental results and the adhesion force theoretical values using the models proposed by Derjaguin, Muller and Toporov (DMT) and Johnson, Kendall and Roberts (JKR) were compared. Although the JKR Model was the closest one to the experimental results, the adhesion force theoretical values were far higher than the

experimental values. Finally a correction constant ( $k_c$ ) was proposed in order to correlate the theoretical values of adhesion force to the experimental values.

**Keywords:** Force of adhesion. Centrifugal technique. Surface rough.

---

## INTRODUÇÃO

A adesão de partículas em superfícies é um parâmetro de grande importância em diversos setores científicos e tecnológicos. Fisicamente, a adesão pode ser compreendida como atração entre dois corpos sólidos, com superfície de contato comum, e produzida pela existência de forças atrativas intermoleculares que atuam a curta distância.

O comportamento da adesão de partículas em superfícies tem sido objeto de estudo há muito tempo. Tal conhecimento é fundamental em vários processos industriais que envolvem micro e nanopartículas, tais como revestimento, impressão, polimento e limpeza, produtos farmacêuticos, na indústria de alimentos, no transporte pneumático de materiais, na fabricação de semicondutores, na formação de aerossol. A adesão de partículas em superfícies sólidas é um fenômeno intimamente associado com a higiene industrial e estudos de poluição do ar (CORN, 1961).

A adesão de pós em superfície pode ter efeitos positivos ou negativos. Enquanto a adesão é requerida em certos processos técnicos como filtração e no revestimento de superfície, em outros pode causar efeitos não desejados, como por exemplo, na indústria de semicondutores onde partículas finas podem aderir aos componentes eletrônicos e causar contaminação. Nas indústrias de enchimento de cápsulas, adesões indesejadas podem afetar seriamente o desempenho dos equipamentos, devido ao contato repetido do material particulado com as estruturas metálicas do equipamento.

Assim, compreender a adesão e remoção entre partículas e superfícies é importante para muitos processos industriais. Por isto alguns pesquisadores vêm se dedicando aos estudos teóricos e experimentais de adesão entre partículas e superfícies, como: (Corn, 1961; Krupp, 1967; Lam e Newton, 1992; Busnaina et al., 1993; Podczec, 1995; Li et al., 2006; Ding, 2008; Rimai et al., 2008; Yang Huang, 2010; Kumar, et al., 2013).

As interações entre partículas e superfície têm sido determinadas teoricamente utilizando métodos analíticos e também experimentais através de medidas diretas da adesão.



Alguns modelos teóricos foram propostos através de investigações da interação entre uma esfera e uma superfície plana, tais como: o modelo de Johnson, Kendall e Roberts JKR (JOHNSON, 1971) e Derjaguin, Muller and Toporov DMT (DERJAGUIN, 1975).

Muitas técnicas para caracterizar a adesão de partícula em superfície foram desenvolvidas nas últimas duas décadas e podem ser classificadas em técnicas de contato e técnicas sem contato. Nas técnicas de contato geralmente são utilizadas um microscópio de força atômica (MFA) e uma sonda para determinar a força de adesão entre a partícula e o substrato. Nas técnicas sem contato a força de adesão é determinada pela aplicação de forças exteriores como eletrostática ou centrífuga.

Entre esses métodos, a técnica centrífuga tem sido amplamente utilizada pelos pesquisadores para medir força de adesão entre partícula e superfície (Booth e Newton, 1987; Otsuka et al., 1988; Podczec et al., 1995; Shimada et al., 2002; Takeuchi, 2006; Nguyen, et al., 2010; Ermis et al., 2011) e tem como vantagem poder determinar a força de adesão entre partículas de formas regulares e irregulares em superfícies lisas ou rugosas.

A técnica centrífuga permite determinar a força de adesão através da distribuição da força adesiva dentro de um grupo grande de partículas (incluindo até 1000 partículas) sobre um substrato, em uma única medida (BÖEHME et al., 1962). A técnica centrífuga para determinar a força de adesão é baseada no desprendimento de partículas de uma superfície do substrato devido à força centrífuga. Por este método, a força de adesão é igual em magnitude, mas com sinal oposto à força centrífuga requerida para desprender as partículas do substrato. Os resultados experimentais obtidos são tratados estatisticamente para se determinar a força de adesão média.

Apesar do grande esforço da comunidade científica, a adesão de partículas e superfícies é um fenômeno que está longe de ser plenamente compreendido. Isso se deve ao fato da adesão ser influenciada pelas características físico-químicas dos materiais pulverulentos e dos substratos, como, por exemplo, o tamanho da partícula, a sua forma, a rugosidade e a composição do substrato e das condições ambientais. Desse modo, esse trabalho tem como objetivo investigar a força de adesão entre partículas e superfícies rugosas utilizando a técnica centrífuga para diferentes velocidades de compressão e desprendimento.

---

## **2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA**

Neste capítulo serão abordados os conceitos necessários para o desenvolvimento do trabalho sobre a determinação da força de adesão entre partículas e substrato como definições de adesão, técnicas para medir a força de adesão, forças envolvidas na adesão entre partículas e substratos e características e propriedades que influenciam na adesão entre dois corpos.

### **2.1. Conceito de adesão**

A ciência da adesão é uma área multidisciplinar, uma vez que requer a aplicação de conceitos de diversos setores do conhecimento como a Física, Química, Engenharia Mecânica e de Materiais e Ciência das superfícies.

A palavra adesão vem do Latim “adhaerere” que significa “grudar em” e é utilizada para descrever um fenômeno físico ou estado comum onde dois materiais estão unidos.

Segundo Oláh e colaboradores (2005), o termo adesão é usado para o fundamento das forças atômicas e moleculares responsáveis por unir duas fases.

Podczek et al., (1995) definiram a adesão de partículas como o resultado de forças que existem entre partículas microscópicas e uma superfície sólida em contato.

A adesão entre superfícies é governada pela deformação de dois corpos em contato e pelas forças de superfície atuando entre eles. Estes dois fenômenos estão intrinsecamente acoplados e dependerão da deformação provocada pelas forças que estão agindo e, ao mesmo tempo, as forças de superfície dependerão da geometria dos corpos. Essa interdependência faz da teoria da adesão um problema complexo que ainda está constantemente em debate (TYKHONIUK et al. 2007).

O termo adesão é usado quando ocorre à interação entre dois corpos diferentes (duas fases), enquanto o termo coesão é utilizado para as interações entre partículas do mesmo composto.

O contato entre os corpos pode ser provocado por forças mecânicas ou forças interfaciais e vários são os fatores que podem influenciar na adesão, como: as forças envolvidas que a determinam, o número de partículas aderidas, as propriedades do meio, as alterações das partículas ao decorrer do desprendimento e a direção da força de desprendimento (BANDA, 2002).

Para uma melhor compreensão teórica destes processos, é necessário distinguir as forças envolvidas na adesão entre partículas e um substrato.

## **2.2 Forças envolvidas na Adesão entre Partículas e Substrato**

Stewart (1986) definiu que a resultante da força de adesão é a somatória de várias forças, como mostra a equação:

$$F_{ad} = F_{vdw} + F_e + F_c \quad (2.1)$$

em que  $F_{ad}$  é a Força de adesão,  $F_{vdw}$  é a Força de Van der Waals,  $F_{es}$  é a Força eletrostática e  $F_c$  é a Força de capilaridade.

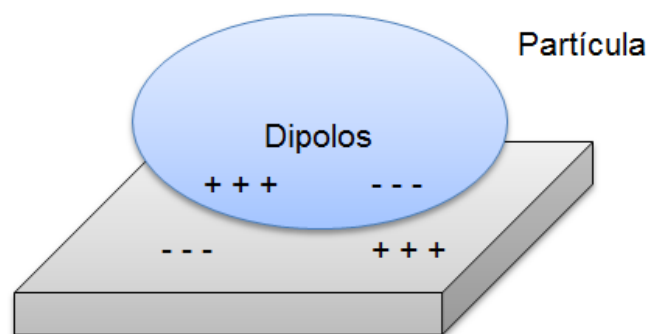
No entanto, predominância de uma dessas forças depende das condições ambientais do sistema em questão e das propriedades físico-químicas dos materiais em contato. Todas essas forças, em tese, são afetadas pelo formato da partícula, pela rugosidade da superfície, pelo tamanho da partícula, pela umidade relativa do ar e pela pressão de aplicação do contato (AHRENS et al., 2005).

A seguir será descrito o mecanismo de ação de cada uma dessas forças no processo de adesão de partículas e substrato.

### 2.2.1 As forças de Van der Waals

As forças de Van der Waals surgem quando os elétrons de uma molécula apolar que estão em constante movimento passam a ter mais elétrons de um lado do que do outro, ficando esta momentaneamente polarizada formando assim áreas transitórias de cargas concentradas denominadas dipolos. Estes dipolos induzem, no material adjacente, dipolos complementares, ou seja, dipolos com cargas de sinais opostos, conforme ilustrado na Figura 2.1. Essa indução entre dipolos produz forças atrativas entre os dois materiais em questão. O aumento da distância que separa as superfícies dos dois materiais provoca a diminuição da força de Van der Waals, sendo que o efeito dessa força se anula para uma maior distância de separação (Krupp, 1967).

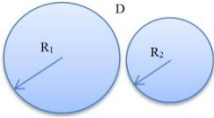
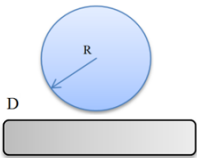

Figura 2.1 – Diagrama representativo da força de Van der Waals.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Segundo Israelachivili (1995), a Força de Van der Waals entre duas partículas esféricas de raios diferentes,  $R_1$  e  $R_2$ , entre uma esfera de raio  $R$  e uma superfície e entre duas superfícies são dadas pelas Eq. a, b e c, apresentadas na Figura 2.2.

Figura 2.2 – Força de Van der Waals entre (a) duas partículas esféricas diferentes, (b) uma esfera e uma superfície e (c) duas superfícies.

(a)	(b)	(c)
Esfera- esfera	Esfera- Superfície	Superfície-superfície
		
$F(vdW) = \frac{H}{6D^2} \left( \frac{R_1 \cdot R_2}{R_1 + R_2} \right)$	$F(vdW) = \frac{HR}{6D^2}$	$F(vdW) = \frac{H}{12\pi D^2}$

Fonte: Adaptado de Israelachivili (1995)

Em que, H é a constante de Hamaker, que depende das propriedades da superfície cujo valor é da ordem de  $10^{-19}$  Nm, e D é a distância de separação entre as duas superfícies. Schubert (1981) propôs que para partículas esféricas lisas o valor de D fosse de  $4 \cdot 10^{-10}$  metros, e sugeriu que para partículas reais este valor seria de  $4 \cdot 10^{-10} \text{ m} < D < 4 \cdot 10^{-8} \text{ m}$ .

Segundo Gady et al. [1997 (a) e 1998 (b)] as forças de Van der Waals superam as forças eletrostáticas quando a distância de separação entre partícula e substrato é menor que 10 nm.

Para os aglomerados de pó seco e inerte, sem ligações químicas e na ausência de um campo elétrico externo, as forças de adesão predominantes entre as partículas e entre as partícula e superfície ocorrem principalmente devido às interações de Van der Waals.

### 2.2.2 As forças eletrostáticas

Durante processos industriais, a agitação das partículas pode provocar atritos ou choques entre elas. Isso faz com surjam cargas elétricas nessas partículas resultando em forças eletrostáticas (DERJAGUIN *et al.* 1978). As forças eletrostáticas podem surgir também pela aplicação de um campo elétrico externo ao sistema.

As forças eletrostáticas são menores para materiais não condutores e maiores para materiais condutores. Estas podem ser obtidas através da expressão proposta por Hinds (1998):

$$F_e = \frac{K_E q^2}{x_q^2} \quad (2.2)$$

em que  $F_e$  é a força eletrostática,  $K_E$  é a constante de proporcionalidade que depende do sistema de unidades usado,  $q$  é a carga eletrostática da partícula e  $x_q$  é a distância de separação de carga contrárias, que pode ser diferente da distância de separação das superfícies.

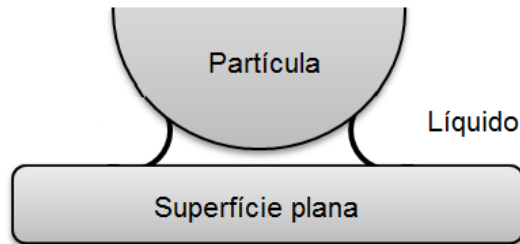
Rumpf (1977) afirmou que as forças elétricas apresentam valores até dez vezes menores do que as forças de Van der Waals e que sua função principal é a de proporcionar o contato das partículas para que então as outras forças, como Van der Waals e capilaridade, possam atuar.

### 2.2.3 As forças de capilaridade

As forças de capilaridades estão diretamente relacionadas com a umidade relativa do ar. Quando a umidade relativa do ar encontra-se acima de 65%, surge também uma umidade entre corpos muito próximos. Essa umidade entre os corpos causa a formação de pontes líquidas que provocam o aparecimento de uma força denominada força de capilaridade.

Materiais porosos e que absorvem água com significativa facilidade mantêm umidade inserida em seus poros nos quais também são formadas pontes líquidas. Uma segunda fonte de força capilar é a umidade que se condensa na abertura entre os corpos contíguos. Tal condensação começa a ocorrer numa umidade relativa do ar acima de 50%. Nesse caso, uma força de atração entre uma partícula e uma superfície é criada pela tensão superficial do líquido no espaço capilar no ponto de contato conforme mostra a Figura 2.3.

Figura 2.3 – Força de adesão entre uma esfera e uma superfície plana devido a um filme líquido



Fonte: Adaptado de Israelachvili (1995)

As pontes líquidas são o resultado principalmente da tensão superficial do líquido e apresentam diferentes estados que dependem da quantidade de líquido presente na ligação.

A diminuição da umidade relativa do ar provoca a diminuição do efeito das forças de capilaridade, sendo que quando a umidade relativa do ar é inferior a 50%, tal efeito na força pode ser até mesmo desprezado (ZIMON, 1982).

O'Brien e Hermann (1973) desenvolveram um método para calcular as forças de capilaridade de acordo com a equação a seguir:

$$F_c = 2.\pi.r_p.\gamma. (\cos \theta_1 + \cos \theta_2 ) \quad (2.3)$$

em que  $F_c$  é a força de capilaridade,  $r_p$  é o raio da partícula,  $\gamma$  é a tensão superficial do líquido condensado e  $\theta_1$  e  $\theta_2$  são os ângulos de contato entre os dois corpos em contato e o líquido.

Posteriormente Fischer e Israelachvili (1981) propuseram outra equação para calcular a força de capilaridade que leva em consideração energia livre interfacial sólido-líquido:

$$F_c = 4.\pi.\gamma.\cos \theta + 4.\pi.r_p.\gamma_{sl} \quad (2.4)$$

em que  $\gamma$  é a tensão superficial do líquido condensado,  $\theta$  é o ângulo de contato entre a partícula aderida e o líquido,  $r_p$  é o raio da partícula e  $\gamma_{sl}$  é a energia livre interfacial sólido-líquido.

## **2.3 Propriedades da partícula**

Algumas características das partículas aderidas influenciam diretamente na intensidade da força adesão, dentre as quais se destacam o tamanho, forma, rugosidade e densidade da partícula. Essas características serão detalhadas a seguir.

### **2.3.1 Tamanho das partículas**

Com o crescente aumento das aplicações de materiais particulados, diversas técnicas de caracterização física de pós têm sido desenvolvidas. Especificamente para tamanho de partícula, é grande a variedade de técnicas disponíveis para sua determinação. Como cada técnica de análise é baseada em princípios físicos diferentes, os resultados obtidos por estas análises podem também ser diferentes. Além disso, os fabricantes de equipamentos de análise usam projetos de construção distintos, o que também pode acarretar resultados diferentes mesmo entre equipamentos que utilizam o mesmo princípio físico básico (PAPINI, 2003).

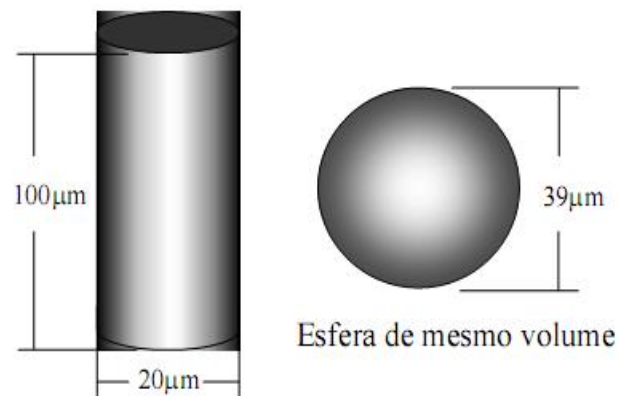
Outro fator de grande importância a ser considerado na determinação da distribuição do tamanho de partícula diz respeito à dimensão da partícula que está sendo medida. Uma esfera pode ter o seu tamanho definido por um único valor: o diâmetro. Porém partículas com formatos irregulares necessitam de mais de uma medida para a quantificação do seu tamanho. Para expressar este valor em um único número, adota-se o valor de uma esfera equivalente.

Uma dada partícula pode ser representada por diferentes esferas, com base em uma das suas diferentes propriedades, tais como: maior ou menor dimensão, área projetada, área superficial, volume, velocidade de sedimentação, massa, dentre outras.

O princípio da esfera equivalente consiste em relacionar alguma dessas propriedades com o diâmetro de uma esfera (ALLEN, 1997). Como exemplo, uma esfera de diâmetro igual a 39  $\mu\text{m}$  tem o mesmo volume de uma partícula cilíndrica de diâmetro e comprimento iguais a 20 e 100  $\mu\text{m}$ , respectivamente, conforme mostra a Figura 2.4.



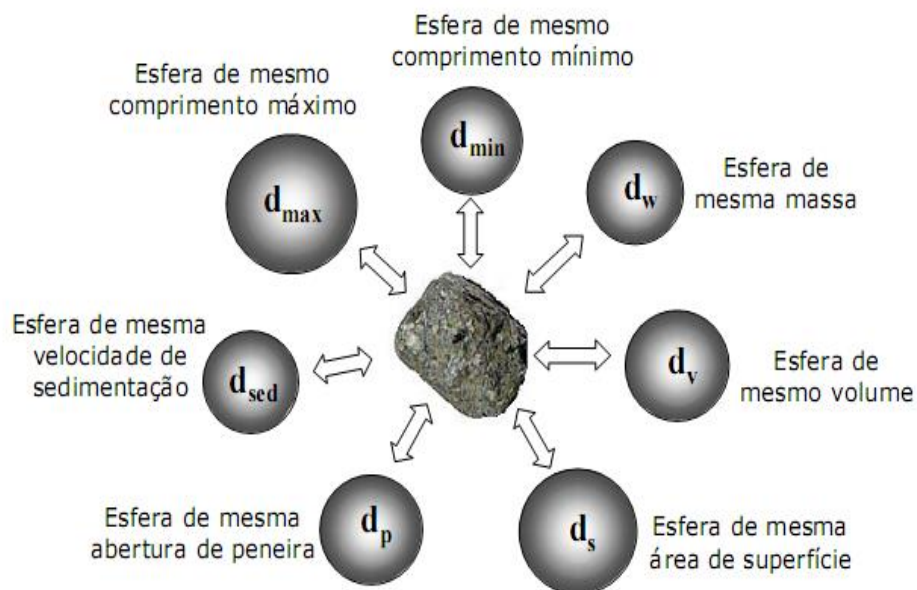
Figura 2.4 – Princípio da esfera equivalente: esfera de mesmo volume.



Fonte: Allen, (1997)

Dependendo do parâmetro que é levado em conta na estimativa do diâmetro equivalente (maior ou menor comprimento, volume, massa, área projetada, velocidade de sedimentação, etc.) o diâmetro dessa esfera equivalente apresenta valores diferentes. A Figura 2.5 ilustra alguns dos diferentes diâmetros médios equivalentes que podem ser gerados a partir de um grão de areia com forma irregular (RAWLE, 2002).

Figura 2.5 – Diâmetros equivalentes para uma mesma partícula.



Fonte: Rawle, (2002)

A escolha do método de determinação mais adequado depende de uma série de fatores, tais como: a natureza da amostra (dissolvida ou em suspensão, solubilidade das partículas, tamanho das partículas, etc.), a natureza do processo (ou seja, qual é o uso do valor de diâmetro obtido), a resolução de cada técnica (precisão do método) e a tradição da utilização da técnica.

Por meio de análises microscópicas é possível observar e medir partículas individualmente. Pode-se obter o valor do diâmetro médio a partir da área projetada da partícula. Esse número representa o tamanho da partícula, sendo possível também determinar a área superficial média da partícula.

O Microscópio Ótico e o Microscópio Eletrônico são aparelhos que podem ser utilizados para medir o tamanho de partículas.

O Analisador de Imagens, como o Image Pro-Plus, permite fazer a contagem do número de partículas distribuídas na superfície do substrato e determinar o diâmetro médio e a área das mesmas.

A distribuição granulométrica das partículas pode ser realizada por diversos equipamentos que utilizam diversas técnicas. Um equipamento bastante utilizado é o Malvern Mastersizer, nesse equipamento a análise é realizada por meio da técnica de espalhamento de laser de baixo ângulo. Esse método de análise de tamanho de partícula, também conhecido como difração a laser, consiste na medição dos ângulos de difração do raio laser, que são relacionados ao diâmetro da partícula. O princípio de funcionamento do Malvern consiste na utilização da difração de um laser para medir os tamanhos das partículas. Os índices de refração para diversas substâncias já vêm tabelados no manual do fabricante.

Os resultados são dados em porcentagem do volume total das partículas na distribuição. Isto quer dizer que, quando o resultado fornece, por exemplo, que 11% da distribuição está numa faixa de tamanho entre 6,97 e 7,75  $\mu\text{m}$ , significa que o volume total de todas as partículas com diâmetro nessa faixa representa 11% do volume total de todas as partículas na distribuição.

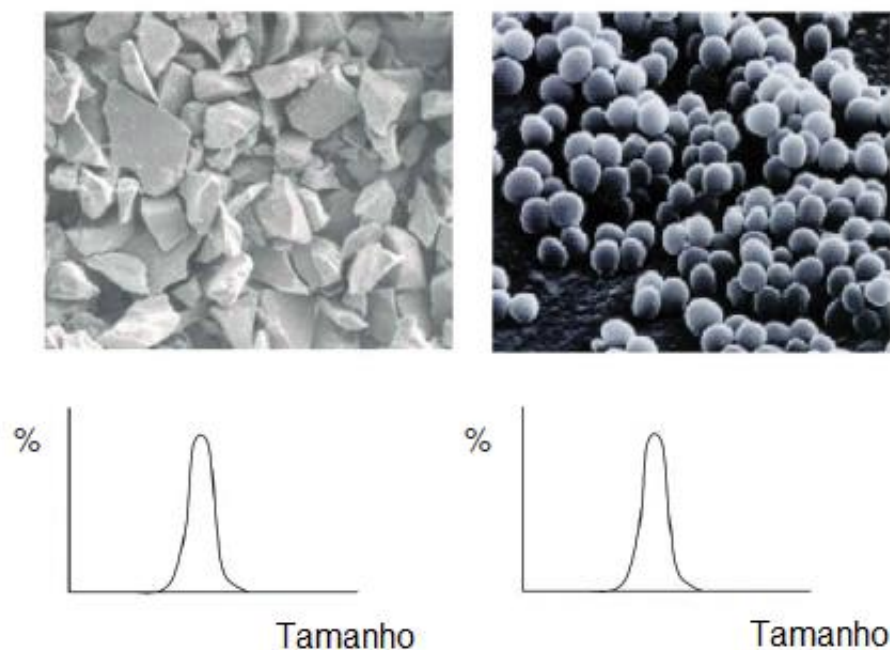
O Malvern utiliza o volume da partícula para medir o seu tamanho. Por exemplo, um paralelepípedo de dimensões 50x25x11 mm tem seu volume igual a 13750  $\text{mm}^3$ , assim, o Malvern mede o volume da partícula e, a partir do volume, encontra seu diâmetro equivalente de uma esfera de diâmetro igual a 30 m.

### 2.3.2 Forma das partículas

Saber a forma das partículas é necessário para descrever seu comportamento das partículas nos processos industriais e nos produtos. O formato das partículas é reconhecido como sendo uma das propriedades fundamentais. Ele afeta, por exemplo, o empacotamento, a densidade, a porosidade, a permeabilidade, a coesão entre outras propriedades das partículas. Partículas diferentes podem ser consideradas, equivocadamente, como idênticas se apenas a distribuição granulométrica for levada em conta (AZEVEDO, 2009).

A Figura 2.6 mostra duas amostras diferentes. As distribuições para cada amostra pode ser a mesma, mas os dois materiais são visivelmente diferentes.

Figura 2.6 – Duas amostras que poderiam ser consideradas idênticas se apenas a distribuição granulométrica fosse avaliada.



**Fonte: Crompton, (2005)**

Vários métodos são propostos para analisar a forma das partículas como, descrição verbal, o uso de diversos coeficientes e fatores de forma, descrição por meio de formas sólidas, série de Fourier, dimensão fractal.

Qualitativamente, é comum que se use termos como: esférica, regular, irregular, arredondada e quadrada, para definir a forma de uma partícula. Com esses termos não é possível determinar o fator de forma da partícula, para esse fim, é necessário medir e definir o formato quantitativamente. Deve ser definido se o que se deseja é apenas medir um valor que possa ser comparado ou poder recriar a partícula a partir dos dados obtidos.

A relação numérica entre várias medidas da partícula depende da forma da partícula e uma relação adimensional dessas medidas é chamada fator de forma. A relação entre as dimensões medidas da partícula e seu volume ou área superficial é chamada coeficiente de forma.

O fator de circularidade é baseado na relação entre a área da projeção bidimensional da partícula  $A$  e a área correspondente do círculo que possui o mesmo perímetro  $P$  da partícula.

$$circularidade = \frac{4\pi A}{P^2} \quad (2.5)$$

Esse parâmetro tem seu valor variando entre 0 e 1, sendo que um círculo perfeito tem circularidade igual a 1.





O aspecto é definido como a relação entre o diâmetro, ou distância, mínimo ( $D_{min}$ ) e o diâmetro, ou distância, máximo ( $D_{max}$ ) da partícula.

$$aspecto = \frac{D_{min}}{D_{max}} \quad (2.6)$$

Esse parâmetro varia entre 0 e 1, partículas simétricas em todos os eixos, assim como um círculo ou um quadrado, terão o aspecto igual a 1 .

Alguns valores obtidos desses fatores de forma para algumas figuras geométricas previamente conhecidas, são apresentados na Tabela 2.1.

Tabela 2.1 – Valores representativos dos fatores de forma para algumas figuras.

Forma	Circularidade	Aspecto
	1	1
	0,89	1
	0,47	0,18
	0,47	0,76

Fonte: Crompton, (2005)

O fator de circularidade e a razão de aspecto de cada partícula podem ser calculados utilizando do Analisador de Imagens (Image Pro-Plus ).

### 2.3.3 Rugosidade das partículas

A rugosidade pode ser definida como um conjunto de irregularidades, fundamentalmente saliências e reentrâncias, que caracteriza uma determinada superfície.

A convexidade da partícula é um parâmetro que possibilita a quantificação da rugosidade superficial e é medida por meio da relação entre o perímetro convexo da partícula ( $P_{convex}$ ) e o perímetro da partícula ( $P$ ).

$$\text{Convexidade} = \frac{P_{convex}}{P} \quad (2.7)$$

Esse parâmetro varia entre 0 e 1, uma partícula não rugosa possui convexidade igual a 1.

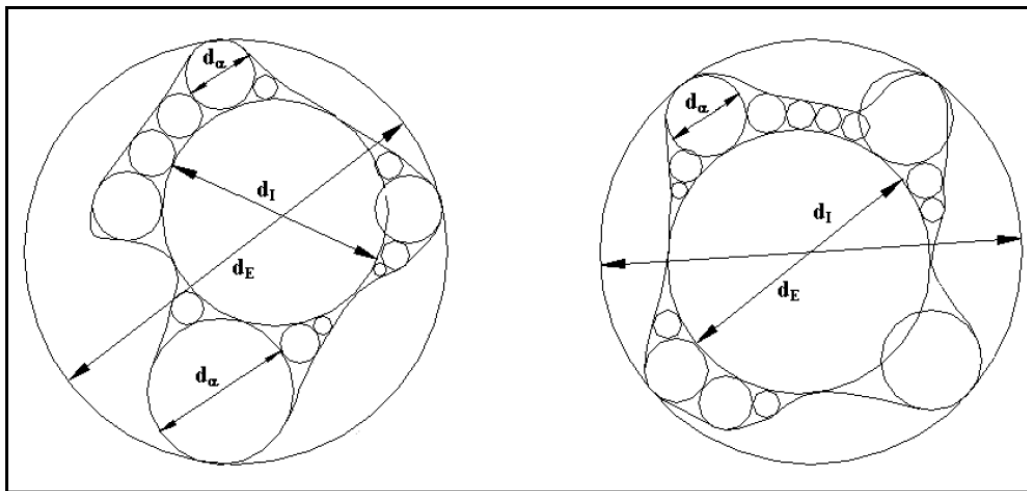
A rugosidade das superfícies das partículas de materiais particulados pode ser estimada utilizando procedimento adotado por Aguiar (1995). Utilizando-se microfotografias

das partículas obtidas de um Microscópio Eletrônico de Varredura a rugosidade das partículas pode ser determinada pelo seguinte procedimento. Para cada partícula das microfotografias são inicialmente desenhadas duas circunferências, uma externa e uma interna, e determinada o diâmetro de cada uma dessa circunferência ( $d_E$  e  $d_I$ , respectivamente). Usando esses diâmetros, o pseudo-diâmetro médio ( $d_\beta$ ) pode ser determinado, utilizando a equação:

$$d_\beta = \frac{d_E + d_I}{2} \quad (2.8)$$

Posteriormente, mais circunferências são desenhadas no interior da partícula ( $d_\alpha$ ), conforme mostra a Figura 2.7.

Figura 2.7 – Esquema utilizado para determinar a rugosidade das partículas.



Fonte: Aguiar (1995)

A rugosidade ( $\alpha$ ) pode ser determinada pela equação:

$$\alpha = \frac{d_\alpha}{d_\beta} \quad (2.9)$$

Sendo que o diâmetro aritmético  $d_\alpha$  é determinado pela equação.

$$d_{\alpha} = \frac{(d_{\alpha 1} + d_{\alpha 2} + \dots + d_{\alpha n})}{n} \quad (2.10)$$

## 2.4 Modelos Mecânicos

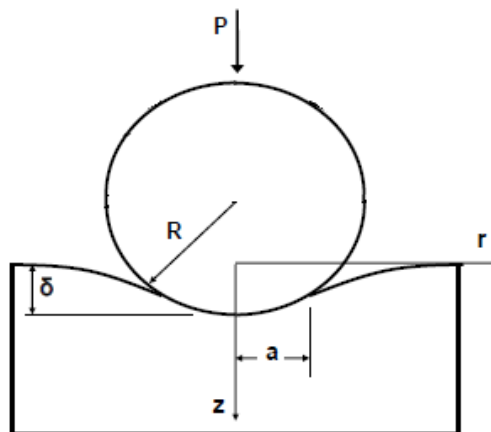
Os principais modelos mecânicos, que explicam o contato entre esferas assim como a adesão entre partículas e uma superfície, são os modelos de Hertz, de Derjaguin- Müller- Toporov (DMT) e de Johnson-Kendall-Roberts (JKR).

Tais modelos foram desenvolvidos para estudar a interação entre uma esfera perfeita e uma superfície plana totalmente lisa, bem como, para estudar o contato entre duas esferas elásticas.

### 2.4.1 Modelo de Hertz

O modelo de Hertz foi desenvolvido em 1881 e considera que quando uma esfera elástica está em contato com uma superfície plana e rígida, e na ausência de energia superficial e de força de compressão entre as mesmas, o contato ocorre somente na superfície da esfera, sem a existência de deformação. No entanto, se a esfera for comprimida contra a superfície plana com uma força externa  $P$ , então existirá uma deformação ( $\delta$ ) na superfície, conforme mostra a Figura 2.8.

Figura 2.8 – Contato entre uma esfera elástica e uma superfície plana.



Fonte: Adaptado, Dahneke (1972)

O modelo de Hertz não considera as forças de superfície e nem as forças de adesão, considera somente a força externa aplicada. Logo, para este modelo, é válida a equação:

$$F_{\text{adesão}} = 0 \quad (2.11)$$

Já que, para este modelo, o contato entre partícula e superfície é unicamente obtido através de uma força externa P aplicada.

#### 2.4.2 Modelo de Johnson-Kendall-Roberts (JKR)

A teoria proposta por Johnson et al. (1971) referida como modelo JKR não leva em consideração as forças de longa extensão fora da área de contato e considera somente forças de curta extensão dentro da região de contato. Com suposições de JKR, a força de adesão é calculada pela Equação 2.12, onde  $r_p$  representa o raio da partícula aderida e  $W_A$  o trabalho de adesão.

$$F_{\text{adesão}} = \frac{3\pi r_p W_A}{2} \quad (2.12)$$

#### 2.4.3 Modelo de Derjaguin- Müller-Toporov (DMT)

Na teoria proposta por Derjaguin (1975), conhecida como o modelo DMT, a esfera elástica é deformada de acordo com a teoria de Hertz, porém além da força externa, também são levadas em conta as forças que agem entre os dois corpos fora da região de contato, ou seja, considera as forças de campo. Estas forças somente produzem uma área finita de contato. Se uma força externa for aplicada, a área de contato aumentará. Se uma força contrária for aplicada, a área de contato diminuirá até alcançar valor zero. A Equação 2.13 fornece o valor da força de adesão segundo DMT, na qual  $r_p$  representa o raio da partícula aderida e  $W_A$  o trabalho de adesão.

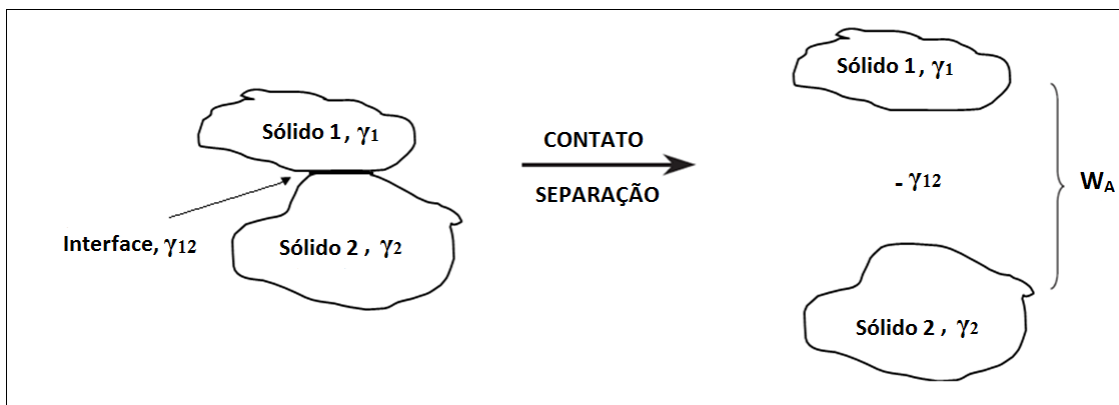
$$F_{\text{adesão}} = 2\pi r_p W_A \quad (2.13)$$



A teoria de Derjaguin-Müller-Toporov (DMT) é aplicável para sistemas com baixa adesão e raios de pequena extensão.

O trabalho de adesão  $W_A$  está relacionado à mudança na energia livre do sistema. Esta mudança, no caso de superfícies em vácuo, corresponde ao trabalho (reversível) feito para separar (ou criar) duas unidades de área de dois meios em vácuo. A Figura 2.9 apresenta diagrama que ilustra a variação de energia total (trabalho de adesão  $W_A$ ) associada com a separação de uma interface de contato.

Figura 2.9 – Diagrama que ilustra a variação de energia total (trabalho de adesão  $W_A$ ) associada com a separação de uma interface de contato.



Fonte: Adaptado, Cheong, (2007)

A quantidade de trabalho (reversível) necessária para separar uma unidade de área da superfície de contato é definida como trabalho de adesão,  $W_A$ , o qual pode ser escrito como a equação de Dupré mostrada abaixo (Israelaachvili, 1995).

$$W_A = \gamma_1 + \gamma_2 - \gamma_{12} \quad (2.14)$$

Sendo que  $W_A$  é o trabalho de adesão entre o material 1 e o material 2,  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  são as tensões superficiais dos materiais 1 e 2 respectivamente e  $\gamma_{12}$  é a tensão superficial da interface entre 1 e 2, por unidade de área. A energia superficial da interface pode ser calculada utilizando-se a regra de Antonow conforme mostra a equação:

$$\gamma_{12} = |\gamma_1 - \gamma_2| \quad (2.15)$$

Para dois sólidos idênticos em contato, a Equação 2.14 se reduz a:

$$W_A = 2\gamma_S \quad (2.16)$$

sendo:  $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma_S$  and  $\gamma_{12} \approx 0$  (Tabor, 1977).

## 2.5 Fatores que afetam a adesão entre partícula e substrato

De acordo com os modelos de adesão tais como JKR e DMT, a adesão de partículas e substrato depende somente das geometrias e as propriedades mecânicas da partícula e o substrato. Na realidade, a adesão partícula-substrato também é influenciada por diversos outros fatores como condições experimentais, propriedade da partícula e da superfície. A umidade relativa do ar, rugosidade da superfície e tamanho da partícula são os principais fatores que dominam a adesão em diferentes circunstâncias.

Nos últimos anos, vários estudos teóricos e experimentais foram desenvolvidos para investigar a influência desses parâmetros sobre a força de adesão entre partícula e substrato (DING, 2008).

### 2.5.1 Tamanho da partícula

Para amostra de partículas polidispersas aderidas a uma superfície, a força necessária para separar as partículas varia proporcionalmente com o tamanho das partículas (Zimon, 1982).

A relação de força de adesão proposta por Bradley (1932) e por Johnson et al. (1971), a força de adesão é diretamente proporcional ao diâmetro das partículas. Em 1998, Bowling realizou um estudo e também verificou a variação direta entre a força de adesão e o tamanho da partícula.

### **2.5.2 Umidade relativa do ar**

A umidade relativa do ar influencia consideravelmente a adesão através da formação de pontes líquidas resultando em fortes forças capilares, que modificam a topologia da superfície. Para superfícies hidrofóbicas a umidade relativa do ar tem pouco efeito sobre a força de adesão. Para partículas hidrofílicas a umidade relativa do ar não afeta significativamente a adesão para valores menores que 50%, mas a força capilar irá dominar a adesão em alta umidade relativa do ar. Acima de 70% de umidade relativa, as forças capilares predominam sobre as outras componentes da força de adesão. Com o aumento da umidade relativa as forças capilares também aumentam, tornando a força de adesão mais forte (Zimon,1982).

O efeito da força de capilaridade na força de adesão entre partícula e substrato tem sido estudado analiticamente e experimentalmente por vários pesquisadores.

Takeuchi (2006) verificou em seu estudo experimental que quando a umidade relativa foi maior que 50% a força de capilaridade começou a contribuir para a adesão entre partículas de toner e substrato e esse força foi dominante para a umidade relativa do ar maior que 70%.

### **2.5.3 Rugosidade da superfície**

A relação entre a rugosidade da superfície e a força de adesão é complexa. A adesão tanto pode aumentar como diminuir com o aumento da rugosidade da superfície (Packham, 2005).

A rugosidade da superfície desempenha um papel importante na força de adesão, uma vez que reduz a área de contato entre os corpos levando à redução significativa na interação (Tambor, 1977). Portanto, a verdadeira área de contato é um fator importante que influencia a adesão entre as partículas.

A diminuição da força de adesão com o aumento da rugosidade da superfície ocorre devido a força de Van der Waals diminuir com a redução na área de contato entre a partícula e a superfície do substrato (Krupp, 1967).

A rugosidade presente nas superfícies dos materiais tem o efeito de diminuir a força de adesão entre os corpos em contato. Quando uma superfície não é perfeitamente lisa, mas tem

rugosidades, a distância entre as duas esferas contatadas é a distância ( $D$ ) mais o raio das rugosidades, ( $R_r$ ). Então a força de Van der Waals entre duas esferas pode ser representada pela equação (Felicetti, 2008):

$$F_{vdw} = \frac{H \cdot d_p}{12(D + R_r)^2} \quad (2.17)$$

em que  $d_p$  é o diâmetro da partícula,  $R_r$  é o raio da rugosidade e  $H$  é a constante de Hamaker.

Considerando-se uma partícula muito pequena, desprezando-se seu raio  $R$  a força de Van der Waals entre a esfera pequena e uma esfera maior é:

$$F = \frac{A \cdot d_p}{12 \cdot D^2} \quad (2.18)$$

Xie (1997) afirmou que, para partículas rugosas dentro da faixa de tamanho 10 – 100  $\mu\text{m}$ , a força total de Van der Waals ( $F$ ) é a mesma força de quando se trata de partículas lisas, se as rugosidades tiverem tamanhos menores que 0,01  $\mu\text{m}$ . Porém, se as rugosidades forem maiores que 0,1  $\mu\text{m}$ , o efeito da rugosidade entre os dois corpos em contato começa a predominar e então o diâmetro usado na equação para o cálculo da força de Van der Waals será o tamanho das superfícies das rugosidades.

A influência da rugosidade da superfície na força de adesão tem atraído significativa atenção da comunidade científica. Beach et al. (2002) caracterizaram a adesão entre partículas farmacêuticas rugosas e superfícies rugosas. Nesse estudo os autores observaram que a adesão entre partícula e superfície rugosa pode aumentar ou diminuir variando a rugosidade da superfície do substrato.

Zhou et al (2003) determinaram a força de adesão entre micropartículas lisas de poliestireno para vários substratos com diferentes rugosidades. Nesse estudo, os autores verificaram uma redução significativa na força de adesão com o aumento da rugosidade da superfície.

## **2.6 Técnicas utilizadas para a medida experimental da força de adesão**

Nas últimas duas décadas, uma variedade de técnicas foi desenvolvida para determinar experimentalmente a adesão entre partícula e substrato que podem ser classificadas em duas categorias: (1) Técnicas de contato (2) Técnicas sem contato.

### **2.6.1 Técnicas de contato**

As medições baseadas em contato são normalmente realizadas com um microscópio de força atômica (MFA) e uma sonda é usada para determinar a força de adesão entre a partícula e o substrato.

#### **2.6.1.1 Microscopia de Força Atômica (MFA)**

A microscopia de força atômica (MFA) é um método comum usado nos campos da ciência que mede com precisão a adesão de uma única partícula. É um método confiável e preciso devido à sua medição ser assistida por microscopia de força atômica combinada com microscopia eletrônica de varredura. Contudo este método tem suas limitações quando se investiga a aderência de partículas que apresentam tamanhos polidispersos sobre uma superfície. Isso porque, a estimativa de um valor representativo da força de adesão deve estar baseada em uma avaliação estatística que observa, pelo menos, algumas centenas de partículas. Portanto, utilizando a técnica de microscopia de força atômica (MFA), levaria vários anos para executar um experimento confiável desta magnitude (Felicetti, 2008).

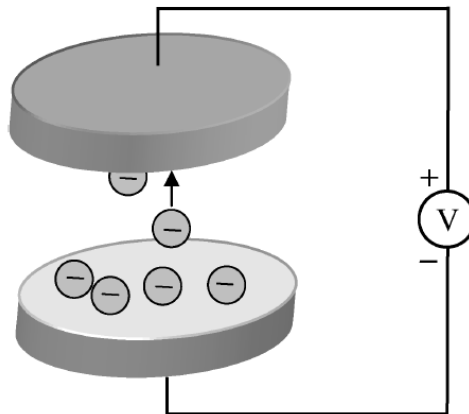
### **2.6.2 Técnicas sem contato**

Nas técnicas sem contato a força de adesão de partículas é determinada pela aplicação de forças exteriores como eletrostática ou centrífuga, sem contato direto.

### 2.6.2.1 Separação por campo elétrico

A técnica de separação por campo elétrico utiliza campos elétricos para remover as partículas de uma superfície. Nessa técnica, dois eletrodos planos são separados por uma determinada distância, conforme mostra a Figura 2.10. As partículas são depositadas em um dos eletrodos e uma tensão contínua é aplicada entre os eletrodos, sendo sua magnitude aumentada gradativamente.

Figura 2.10 – Separação por campo elétrico.



**Fonte: Ding, (2008)**

Quando a força de Coulomb exercida sobre uma partícula pelo campo elétrico excede a força de van der Waals e as interações eletrostáticas entre partícula e o substrato, a partícula será separada do substrato. Essa técnica pode ser usada para investigar a influência do tamanho da partícula, forma e superfície rugosa na adesão de partícula e substrato (TAKEUCHI, 1995). Porém, esse método caracteriza a força de adesão somente de partículas carregadas uma vez que partículas sem carga não podem ser retiradas por campos elétricos. Mizes (2000) usou essa técnica para determinar experimentalmente a adesão das partículas de toner em vários substratos.

### 2.6.2.2 Técnica Centrífuga

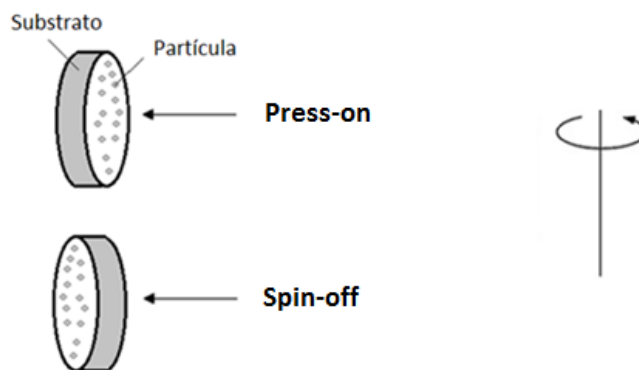
A técnica centrífuga está baseada na separação de partículas de uma superfície do substrato devido à ação da força centrífuga. A força centrífuga tem direção de atuação radial e aponta sempre do centro para o exterior da trajetória circular descrita pelo corpo no referencial fixo do laboratório.

A força centrífuga é empregada para consolidar ou remover as partículas de um material pulverulento sobre a superfície de um substrato. A técnica centrífuga descrita por Podczeczek e Newton (1995), mostra que duas forças centrífugas aplicadas devem ser diferenciadas.

- (a) A força *press-on* é aplicada para aumentar o contato entre as partículas e a superfície do substrato. A superfície, com o material pulverulento, é posicionada no tubo adaptado à centrífuga, de forma que a força centrífuga atue primeiro sobre a partícula e em seguida sobre a superfície.
- (b) A força *spin-off* é aplicada para separar as partículas aderidas à superfície. A superfície, com o material pulverulento é posicionada no tubo adaptado à centrífuga, de tal forma que a força centrífuga atue primeiro na superfície e depois sobre as partículas.

A Figura 2.11 ilustra o efeito da aplicação das forças centrífugas *press-on* e *spin-off* sobre a superfície do substrato contendo o material pulverulento.

Figura 2.11 – Desenho esquemático da força de *press-on* e da força de *spin-off*

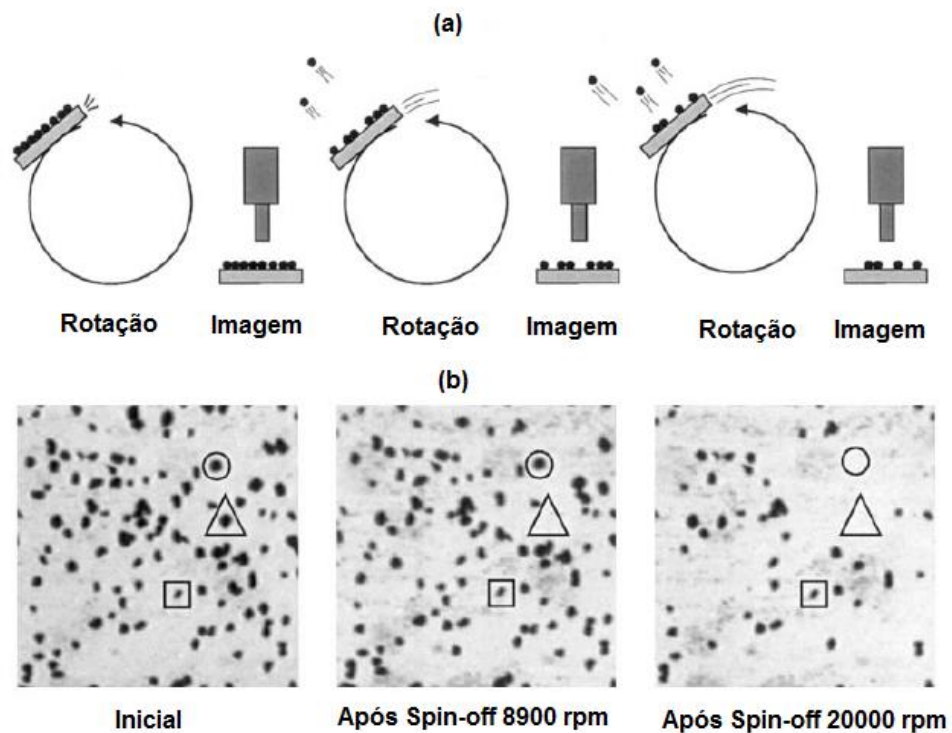


Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

As partículas são depositadas na superfície do substrato e levadas a uma centrífuga. A superfície é rotacionada a velocidades crescentes, e a cada aumento da velocidade rotacional o número de partículas que permanecem sob a superfície do substrato é fotografado na mesma área da superfície onde as partículas foram depositadas.

A Figura 2.12 (a) mostra o desprendimento das partículas de um experimento utilizando a técnica centrífuga.

Figura 2.12 – (a) desprendimento das partículas na técnica centrífuga, (b) análises das imagens das superfícies, no início e depois de cada rotação.



Fonte: Mizes, (2000)

A Figura 2.12 (b) apresenta três imagens de um determinado experimento utilizando a técnica centrífuga, no início e depois de cada rotação, obtidas por Mizaes (2000). Observa-se que dentro do triângulo está presente uma partícula fracamente aderida na superfície que foi removida após a aplicação da velocidade angular de desprendimento de 8900 rpm. A partícula dentro do círculo permanece aderida na superfície após a aplicação velocidade angular de desprendimento 8900 rpm, mas foi removida após a aplicação velocidade angular de desprendimento 20000 rpm. E dentro do quadrado, a partícula está fortemente aderida na



superfície e não foi removida após a aplicação da velocidade angular de desprendimento 20000 rpm.

O uso de uma centrífuga para medir forças de adesão está baseado no princípio que a força é o resultado da velocidade angular de uma partícula de massa determinada a uma distância determinada do centro de rotação. A velocidade angular excederá a força de adesão entre a partícula e a superfície sobre uma velocidade centrífuga crítica. No equilíbrio, a grandeza da força centrífuga aplicada iguala-se à força de adesão, mas com sinal contrário, conforme mostra a equação:

$$F_{\text{centrífuga}} = - F_{\text{adesão}} \quad (2.19)$$

A técnica centrífuga, para determinar a força de adesão, é baseada na separação de partículas de uma superfície de substrato devido à força centrífuga que depende da velocidade angular da centrífuga ( $\omega$ ), da distância entre a superfície do substrato, do eixo de rotação ( $r$ ) e da massa das partículas ( $m$ ). A força centrífuga aplicada é representada pela equação:

$$F_{\text{centrífuga}} = m \omega^2 r \quad (2.20)$$

A técnica centrífuga permite a determinação da força de adesão de um grande número de partículas em um único experimento. Além disso, ela pode ser usada para investigar a adesão de partículas carregadas ou não carregadas. Esta técnica possui também como vantagem poder determinar a força de adesão entre partículas de forma regular e irregular em superfícies lisas ou rugosas sendo, por isso, a técnica que será utilizada neste estudo.

No entanto, essa técnica pode ser aplicada apenas para partículas na faixa de tamanhos entre 7 a 100  $\mu\text{m}$ , pois a força centrífuga é proporcional ao volume das partículas e com a diminuição do tamanho das partículas seria necessária maior velocidade de centrifugação para remover as partículas e a velocidade de rotação das ultracentrífugas disponíveis é limitado devido à estabilidade do material do rotor. Isso restringe as medições de adesão com a técnica centrífuga para partículas maiores do que poucos microns. Caso contrário, a força centrífuga não é suficientemente forte para separar as partículas da superfície (TYKHONIUK et al., 2007).

A seguir, serão descritos resumidamente alguns trabalhos experimentais que envolvem a determinação da força de adesão entre partícula e substrato através da técnica centrífuga.

Lan e Newton (1991) realizaram um estudo experimental utilizando a técnica centrífuga. Nesse estudo, foi investigado o efeito do tamanho de partícula sobre o comportamento da adesão utilizando quatro pós farmacêuticos, depois da aplicação da força de compressão inicial sobre a superfície de um substrato de aço. Os pós utilizados foram polietileno glicol 400, amido 1500 e lactose pulverizada com faixa de diâmetro de 45 – 56  $\mu\text{m}$  e carbonato de cálcio 32 – 45  $\mu\text{m}$  sendo utilizada uma centrífuga cuja velocidade máxima de rotação atingia 18000 rpm. Os autores demonstraram que a força de adesão média, para todos os pós, aumenta linearmente com a força de compressão.

Banda (2002) desenvolveu uma metodologia experimental para determinar a força de adesão entre partícula e superfície plana, utilizando a técnica centrífuga. A partir da metodologia proposta, foi possível investigar a influência da granulometria do material pulverulento sobre a força de adesão partícula-superfície. Para tal finalidade, estudou-se a adesão de partículas de concentrado fosfático e polvilho doce nas faixas de diâmetro de 14 – 27  $\mu\text{m}$ , 27 – 39  $\mu\text{m}$ , 39 – 52  $\mu\text{m}$  em uma superfície de aço. Nesse trabalho, foi utilizada nos experimentos uma microcentrífuga que atingia velocidade máxima de 14000 rpm e também um programa de análise de imagens Image Pro Plus. Em seu estudo, o autor observou, através dos dados experimentais, que a força de adesão aumenta com o aumento do tamanho das partículas para os dois materiais pulverulentos estudados e esse aumento apresentou comportamento linear. O autor observou também que a força de adesão para as partículas de concentrado fosfático foi maior do que para as partículas de polvilho doce, sendo estas da ordem de  $10^{-6}$  N e de  $10^{-9}$  N, respectivamente.

Takeuchi (2006) também usou esta técnica para investigar força de adesão entre partículas de toner esféricas e irregulares e partículas de polímeros em substrato de alumínio. Nesse estudo, o autor verificou que a força de adesão de partículas de toner aumenta com o aumento no tamanho da partícula e que a força de adesão de partícula do toner de uma forma irregular foi maior do que de um toner de forma regular. Os fatores que afetam a força de adesão foram discutidos e também a contribuição da força de van der Waals e força eletrostática.

Felicetti (2008) investigou a influência do tamanho das partículas de material pulverulento orgânico e inorgânico sobre a força de adesão entre essas partículas em substratos de aço inoxidável, PVC, Teflon e vidro, aplicando a técnica centrífuga, variando as

velocidades de compressão e de desprendimento. Os materiais pulverulentos utilizados foram o inorgânico, concentrado fosfático ( $d_p = 39,38 \mu\text{m}$ ), e o orgânico, polvilho doce ( $d_p = 25,24 \mu\text{m}$ ). Nesse estudo, o autor verificou que os pós obedeceram à distribuição log-normal de porcentagem de partículas aderidas em relação à força de adesão. Foi obtida a força de adesão mediana geométrica para todos os pós e verificou-se que houve um aumento linear com a força de compressão aplicada preliminarmente. A força de adesão foi maior para o polvilho doce do que para o concentrado fosfático, e o substrato de vidro apresentou maior força de adesão seguido do aço inoxidável, PVC e Teflon.

Faustino (2010) estudou a influência do tamanho das partículas, da velocidade de compressão e do material constituinte do substrato sobre a força de adesão partícula substrato. Para tal finalidade, aplicou-se a técnica centrífuga para as velocidades de compressão de 500, 1000 e 1500 rpm e velocidades de desprendimento de 500 a 14000 rpm. Foi utilizado como material pulverulento o concentrado fosfático nas faixas de diâmetro de 9 – 22; 22,1 – 40; 40,1 – 54 e 54,1 – 77  $\mu\text{m}$ . Nesse trabalho o autor constatou que a força de adesão aumentou com o acréscimo da velocidade de rotação da centrífuga aplicada na compressão e com o aumento do tamanho das partículas do material pulverulento.

Esta técnica também foi utilizada por Nguyen et al. (2010) para determinar a força de coesão entre partícula e substrato. Foram utilizadas nos experimentos partículas de celulose microcristalina de faixa de tamanho 38 – 53  $\mu\text{m}$ . Para realizar esse estudo, os autores utilizaram superfícies de substrato de diferentes porosidades que foram preparadas compactando as partículas de celulose microcristalina de diferentes granulometrias na mesma pressão de compactação. A fração de tamanho de 100 – 160  $\mu\text{m}$  foi utilizada para fazer comprimidos de superfície rugosa e outra de faixa inferior a 38  $\mu\text{m}$  utilizada para fazer comprimidos de superfície lisa. Neste trabalho, os autores propuseram um planejamento experimental para investigar o efeito da força press-on, o tempo de aplicação da força press-on e a rugosidade da superfície e mostraram que todos esses fatores têm efeito na força de adesão.

Recentemente, Ermis et al. (2011) avaliaram o efeito de características físicas como o tamanho, forma e densidade de partícula de alimentos em superfícies alimentares usando a técnica centrífuga. Nos experimentos, foram utilizadas partículas de sal de três faixas de diâmetros 63 – 125; 125 – 180 e 180 – 250  $\mu\text{m}$  e como substrato amostra de batata frita de 3 cm de diâmetro e 3mm de espessura. Partículas de vidro esféricas na faixa de diâmetro de 150 – 180 e 180 – 250  $\mu\text{m}$  também foram utilizadas para investigar o efeito da forma na força

de adesão. Neste trabalho, os autores observaram alterações significativas na força de adesão por partículas com diferentes tamanhos e formas.

Apresentada a revisão bibliográfica, a seguir serão descritos os materiais e métodos utilizados neste trabalho.

---

### 3. MATERIAIS E MÉTODOS

Neste capítulo serão apresentados os equipamentos e a metodologia utilizados para a realização dos experimentos.

#### 3.1 Equipamentos

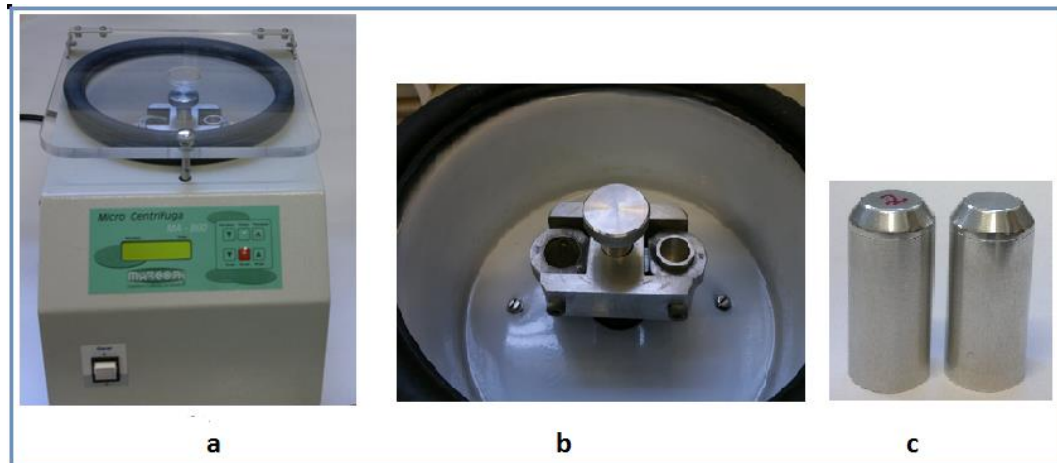
O sistema experimental utilizado é formado principalmente por uma microcentrífuga (MA – 860, Marconi Equipamentos), um microscópio óptico (Olympus BX60), um programa analisador de imagens (Image-Pro Plus 7.0), um microcomputador que contém os softwares necessários para o tratamento e a análise dos resultados e outros equipamentos necessários para o desenvolvimento do trabalho.

##### 3.1.1 Microcentrífuga

A determinação da força de adesão foi realizada utilizando-se a técnica centrífuga que utiliza a análise de imagens para determinar o número de partículas aderidas na superfície dos substratos antes e depois de cada centrifugação.

Utilizou-se para tanto uma microcentrífuga (MA – 860, Marconi Equipamentos), cuja velocidade máxima de rotação é de 14000 rpm. Essa microcentrífuga possui um dispositivo de partida lenta, além de uma aceleração bastante moderada. Essas características foram importantes para o desenvolvimento deste trabalho, pois evitava que as partículas fossem desprendidas da superfície dos substratos no início de cada teste devido a um arranque brusco da mesma. Outra característica importante era a sua capacidade de desaceleração lenta. Com isso se evitava o desprendimento das partículas no momento da parada do equipamento. A microcentrífuga utilizada nos experimentos está ilustrada na Figura 3.1.

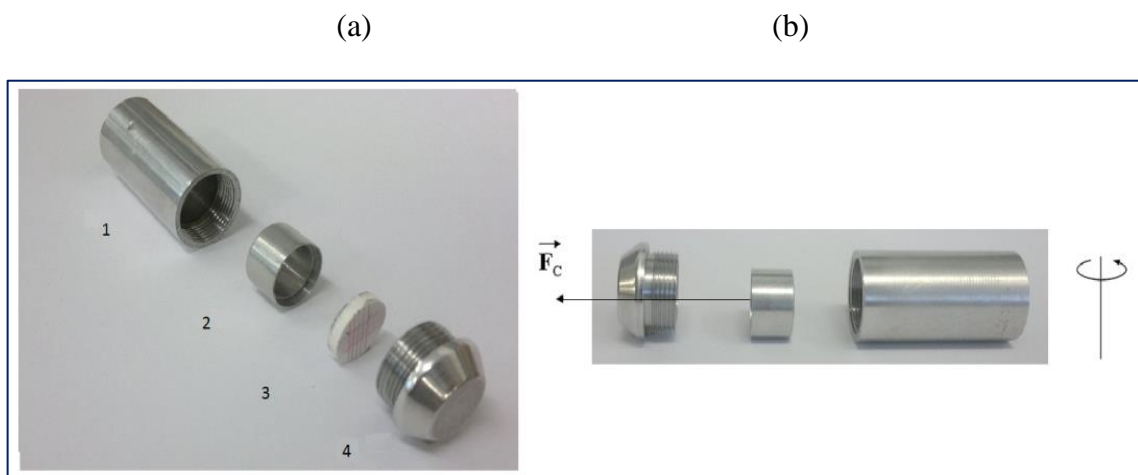
Figura 3.1 – (a) Microcentrífuga. (b) Detalhe do rotor. (c) porta amostra em formato de tubo.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

No cabeçote da microcentrífuga foram instalados dois tubos (porta amostra) que possui 1,5 cm de diâmetro e 5 cm de altura, nos quais foram colocados adaptadores, cuja finalidade era de sustentar os substratos contendo o material pulverulento distribuído em sua superfície. Os tubos e os adaptadores, mostrados na Figura 3.2, foram construídos em alumínio, por se tratar de um material leve e resistente, não apresentando grande inércia às velocidades de rotação da microcentrífuga.

Figura 3.2 – (a) Diagrama esquemático do porta amostra em formato de tubo, construído em alumínio. (1) tubo, (2) adaptador, (3) substrato, (4) tampa. b) Esquema do eixo de rotação.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

### 3.1.2 Equipamentos para aquisição e análise de imagens

Para aquisição e análise das imagens, foi utilizado um microscópio óptico com lente cuja capacidade de ampliação é de 1000 vezes conectado a uma câmara de vídeo colorida (CCD-Iris – Sony Co. Japan) com lente cujo aumento era de 100 vezes. O programa Analisador de Imagens Image-Pro Plus 7.0, instalado no microcomputador, permitiu fazer a contagem do número de partículas distribuídas na superfície do substrato e determinar o diâmetro médio e a área das mesmas. A Figura 3.3 apresenta o sistema utilizado para análise das imagens.

Figura 3.3 – Equipamentos utilizados para aquisição e análise das imagens.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

### 3.1.3 Outros equipamentos

Além dos equipamentos já citados, foram utilizados um Picnômetro digital a Hélio da marca micrometris para determinar a densidade da material pulverulento e um analisador de

granulometria Mastersize Microplus da marca Malvern para a obtenção da granulometria do material pulverulento.

Para que as partículas não ficassem aglomeradas, e assim evitar a ocorrência de erros na contagem das partículas no analisador de imagens, as partículas do material pulverulento foram dispersas na superfície dos substratos, utilizando-se o dispersor de pó ( Galai PD – 10 , vacuum gage), que utiliza o vácuo para dispersar as partículas de pó na superfície do substrato. O dispersor de pó, que possui 16 cm de diâmetro e 34 cm de altura, está apresentado na Figura 3.4.

Figura 3.4 – Dispersor de pó.



**Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)**

O controle da umidade foi muito importante neste trabalho, porque um dos objetivos era a determinação da força de adesão de pós secos, sendo as forças predominantes as forças de Van der Waals. Diante disso, um desumidificador e um ar condicionado foram utilizados para se extrair a umidade do ar do laboratório, mantendo-a abaixo de 50%, para reduzir a influência da força de capilaridade existente quando a umidade relativa do ar for superior 50%.

A umidade relativa do laboratório foi determinada por um termo-higrômetro digital (*Minipa MTH-1360*). Utilizou-se também uma estufa de secagem e esterilização, onde o



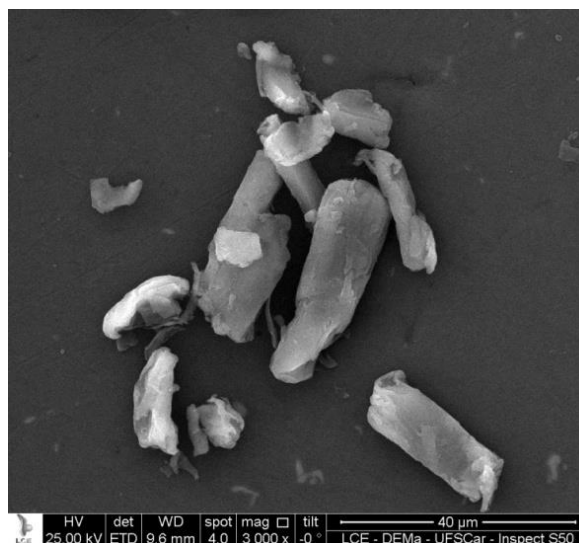
material pulverulento e o substrato eram colocados durante 24 horas e um dessecador que continha esferas de sílica, para evitar a absorção de umidade pelo material pulverulento e o substrato, onde estes eram armazenados depois de retirado da estufa.

### 3.2. Material Pulverulento

Nos experimentos, foi utilizada como material pulverulento a celulose microcristalina (*Sigma-Aldrich*). A celulose microcristalina, que é um dos mais importantes excipientes farmacêuticos para a formulação de comprimidos, é um pó fino branco, praticamente insolúvel em água. Excipiente é uma substância que serve para ligar ou dissolver outras substâncias que constituem uma forma farmacêutica.

A Figura 3.5 apresenta a imagem microscópica da celulose microcristalina obtida no microscópio eletrônico de varredura – Inspect S50, com ampliação de 3000x. Observa-se nesta figura que as partículas de celulose microcristalina são irregulares na forma e no tamanho além de possuir a superfície rugosa.

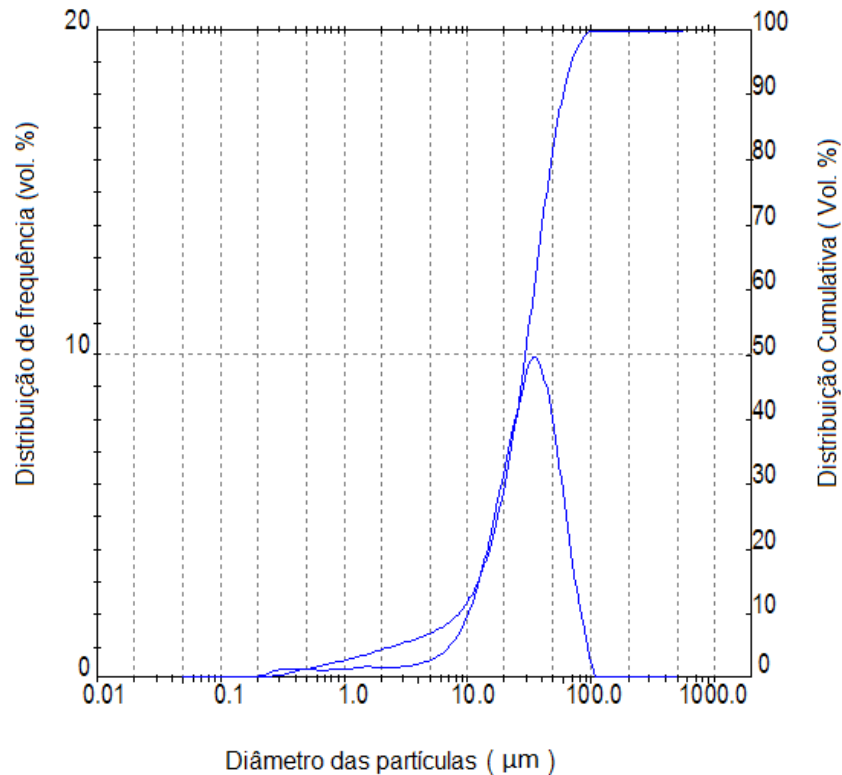
Figura 3.5 – Imagem da celulose microcristalina com ampliação de 3000x obtida no Microscópio Eletrônico de Varredura – Inspect S50 – (LCE – DEMa – UFSCar).



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

A distribuição granulométrica da celulose microcristalina utilizada neste trabalho foi obtida pelo analisador Malvern Mastersize Microplus 5001 no DEQ-UFSCar e está apresentada na Figura 3.6. Para a determinação do diâmetro médio da partícula foi realizada a média de três análises.

Figura 3.6 – Distribuição granulométrica da celulose microcristalina *Sigma-Aldrich*.



**Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)**

A densidade da partícula foi determinada utilizando-se o Picnômetro digital de Hélio (Micromeritics AccuPyc 1330) com precisão de  $\pm 0,06 \text{ g/cm}^3$ , sendo realizada também a média de três análises.

A circularidade da partícula foi determinada a partir da análise de imagens através do programa Image-Pro Plus 7.0 e pela Equação 2.5.

As principais características encontradas para a partícula de celulose microcristalina estão apresentadas na Tabela 3.1.

Tabela 3.1 – Caracterização do material particulado

Caracterização	Celulose Microcristalina
Densidade (kg/m <sup>3</sup> )	1620
Circularidade	0,68
Diâmetro médio (µm)	28

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se na Figura 3.5 que o formato das partículas de celulose microcristalina é irregular e isso pode ser confirmado através do cálculo da circularidade pela Equação 2.5 em que o valor encontrado foi 0,68.

### 3.3. Substratos

Os substratos são discos com 14 mm de diâmetro onde o material pulverulento é depositado em sua superfície para a determinação da força de adesão.

Os materiais utilizados como substratos foram uma membrana filtrante de éster-celulose com 0,2 µm de porosidade, da marca *Shleicher & Shuell – Filtration Life Science*, utilizada em processos de monitoramento de material particulado e um comprimido de partículas de celulose microcristalina. A membrana filtrante, por ser fina e leve, foi cortada em tamanho de 14 mm de diâmetro e colada na superfície do disco de aço inoxidável. A Figura 3.7 mostra substrato membrana filtrante de éster-celulose 0,2 µm de porosidade.

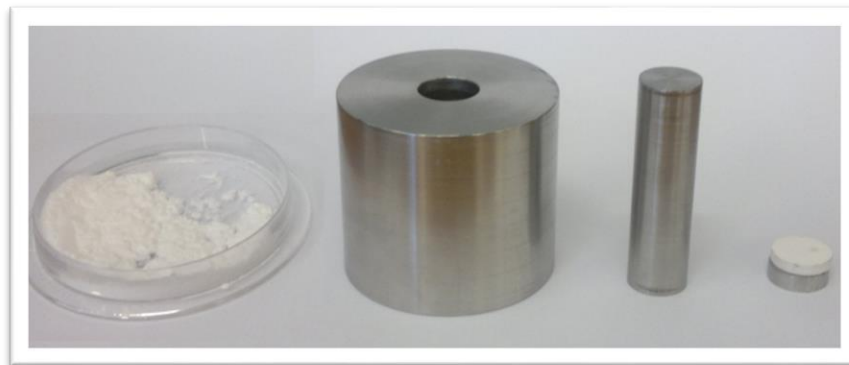
Figura 3.7 – Substrato membrana filtrante de éster-celulose.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

A obtenção do comprimido de celulose microcristalina de 14 mm de diâmetro e três mm de espessura foi realizada por compressão da celulose microcristalina em pó. Para a produção dos comprimidos foi feita a alimentação da matriz com aproximadamente 0,4 g pó de celulose microcristalina e em seguida a compressão deste utilizando uma prensa hidráulica com compressão máxima de compactação de 750 kg. A Figura 3.8 mostra a matriz utilizada na produção do comprimido.

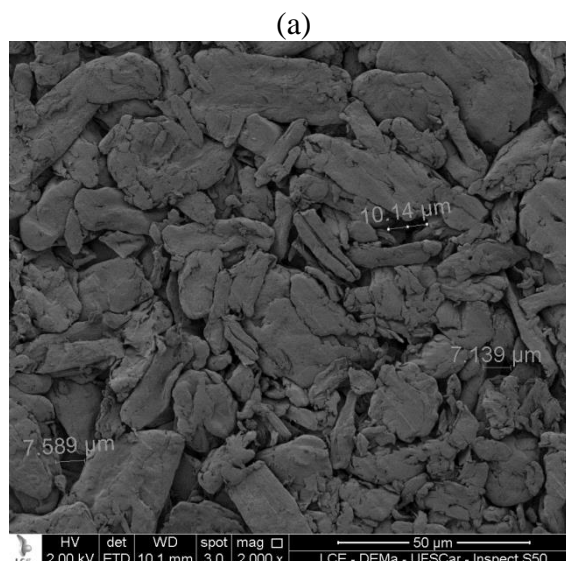
Figura 3.8 – Matriz para a fabricação de comprimidos de celulose microcristalina.



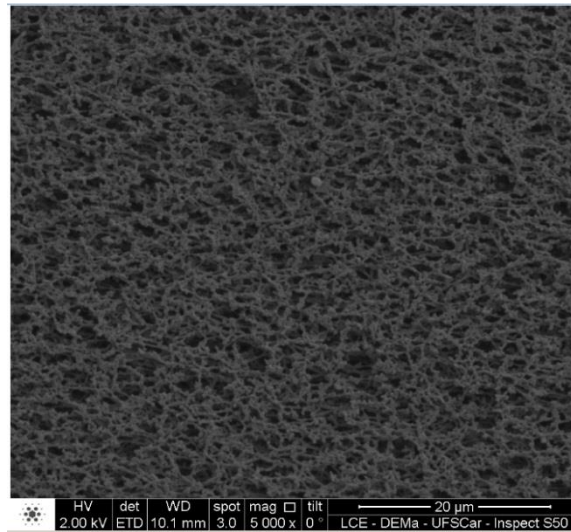
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

A Figura 3.9 apresenta fotomicrografias obtidas por microscopia eletrônica de varredura dos dois substratos utilizados nos experimentos.

Figura 3.9 – Fotomicrografias obtidas no Microscópio Eletrônico de Varredura (a) Comprimido de Celulose Microcristalina com ampliação de 2500x (b) Membrana Filtrante de éster–celulose com ampliação de 5000x.



(b)



**Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)**

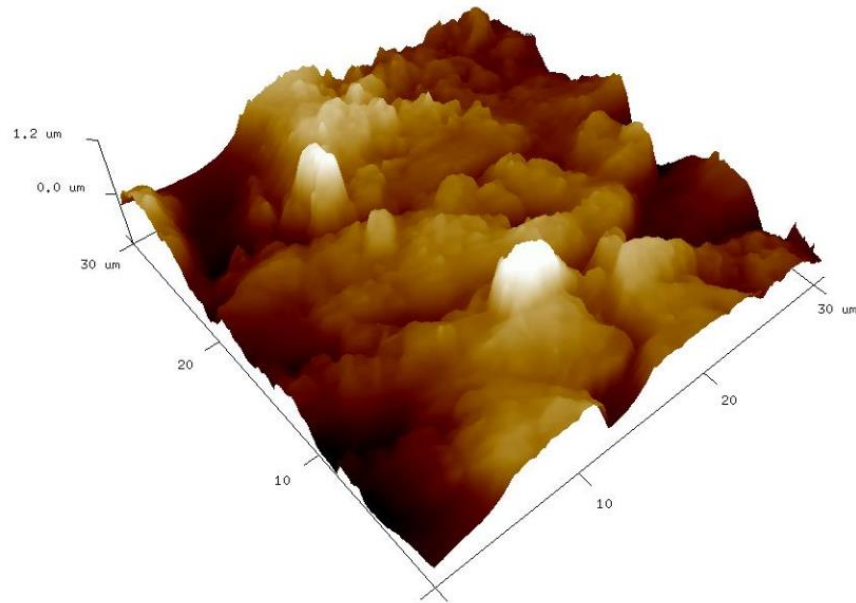
Observa-se através da Figura 3.9 que os dois substratos utilizados nos experimentos apresentaram superfície irregulares.

A Figura 3.10 apresentam imagens topográficas tridimensionais das superfícies do (a) comprimido de celulose microcristalina e da (b) membrana filtrante de éster–celulose. Essas imagens foram feitas no microscópio de força atômica do Departamento de Engenharia de Materiais – UFSCar.

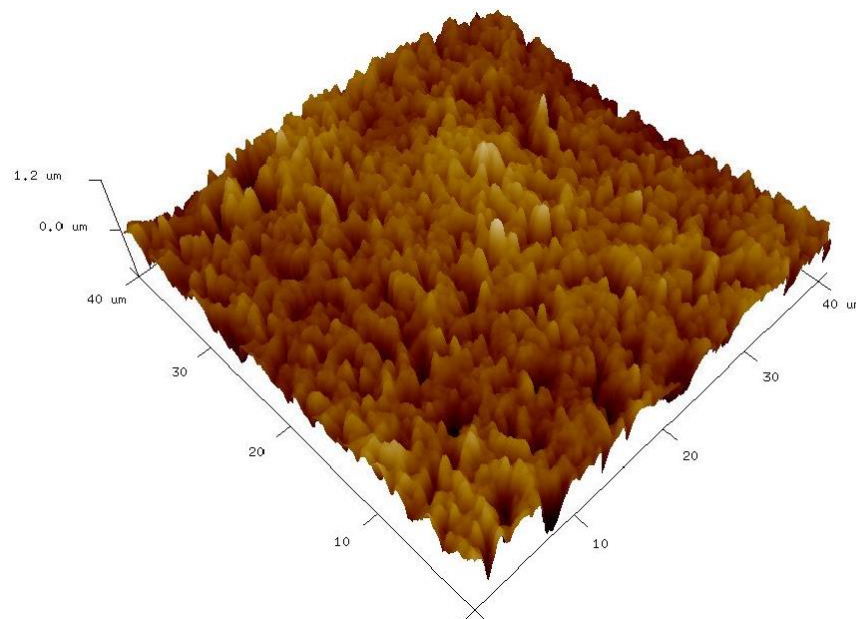
Os valores de rugosidade encontrados para o comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante foram de 383,6 nm e 176,6 nm respectivamente e representam a altura média de rugosidade das superfícies.

Figura 3.10 – Imagens topográficas tridimensionais das superfícies do (a) comprimido de celulose microcristalina e da (b) membrana filtrante de éster-celulose obtidas no microscópio de força atômica (DEMa – UFSCar).

(a)



(b)



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

### 3.4 Metodologia da técnica centrífuga

A determinação da força de adesão entre a partícula de celulose microcristalina e o substrato foi realizada utilizando-se a técnica centrífuga. Esta técnica foi utilizada para medir a distribuição da força de adesão de várias centenas de partículas simultaneamente.

A técnica centrífuga é definida baseando-se no princípio de que a força é o resultado da velocidade angular de uma partícula de massa determinada a uma distância determinada do eixo de rotação.

Para determinar a força de adesão através da técnica centrífuga, um tubo foi especialmente construído e adaptado junto ao cabeçote do rotor da centrífuga com a finalidade de acomodar os substratos (discos de prova) contendo o material pulverulento paralelo ao eixo de rotação da centrífuga.

Um software de análise de imagens e uma câmera de vídeo foram usados para fotografar a posição de cada partícula na imagem. Assim podem-se analisar as mesmas partículas que permaneceram na superfície do substrato após cada aumento da velocidade rotacional até que, a força gerada seja suficiente, ou não, para remover aquela partícula.

A umidade relativa do ar dentro do laboratório foi monitorada e mantida abaixo de 50%, pois acima desse valor a força capilar pode influenciar na força de adesão (Zimon, 1982). Para isso, utilizou-se um aparelho desumidificador e um aparelho de ar condicionado. A temperatura do laboratório foi mantida entre 18 e 19°C e a umidade relativa foi de 40% ( $\pm 2$ ). A umidade relativa do ar e a temperatura do ambiente eram medidas utilizando-se um termo-higrômetro digital (Minipa MTH-1360).

Inicialmente, armazenou-se o material pulverulento em dessecadores com sílica gel, com o objetivo de evitar absorção de umidade do ambiente enquanto não estavam sendo utilizados nos experimentos, garantindo-se assim baixa umidade.

Os substratos foram marcados em quadrantes que serviam como referência na localização de uma determinada partícula ou de uma determinada área do substrato, ao se utilizar o analisador de imagens.

A Figura 3.11 apresenta o substrato comprimido de celulose microcristalina marcado em quadrantes.

Figura 3.11 – Substrato comprimido de celulose microcristalina marcado em quadrantes.



**Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)**

Antes de cada corrida experimental, as partículas foram dispersas na superfície do substrato usando-se um dispersor de pó (Galai PD-10). Este sistema utilizava o vácuo para dispersar as partículas de pó sobre a superfície do substrato evitando-se a aglomeração das partículas na superfície do substrato e, conseqüentemente, minimizando-se a ocorrência de erros na contagem das partículas,

Para a dispersão das partículas, primeiramente era feito vácuo dentro do dispersor, representado pela Figura 3.4, onde já se encontrava o substrato onde deveriam ser depositadas as partículas. Quando a pressão interna encontrava-se em aproximadamente 0,55 bar, cerca de 0,02g de pó era depositado em um local específico na superfície superior do dispersor. Uma válvula era aberta e o pó era sugado pelo vácuo para dentro do dispersor, sendo então disperso sobre a superfície do substrato.

Após as partículas serem dispersas na superfície do substrato, este era retirado de dentro do dispersor e colocado no porta amostra que está representado pela Figura 3.2. Estes tubos foram construídos para inclinar os substratos a 90°, quando a microcentrífuga era acionada. No lado oposto ao que foi colocado o porta amostra contendo o material em estudo, era colocado outro porta amostra com o intuito de evitar a trepidação da centrífuga por um desequilíbrio de pesos.

O substrato foi orientado de forma que a superfície contendo o material pulverulento estivesse posicionada, nos tubos adaptados à centrífuga, para dentro da trajetória circular do movimento de rotação da centrífuga, de forma que a força aplicasse uma pressão sobre as partículas contra a superfície, ou seja, estava sendo aplicada a força centrífuga de compressão, press-on.

As velocidades angulares de compressão e as faixas de diâmetro utilizadas para cada substrato utilizado estão representadas na Tabela 3.2.



Tabela 3.2 – Substratos, velocidades angulares de compressão e desprendimento e as faixas de diâmetro de partículas de celulose microcristalina utilizados nos experimentos.

Substrato	Material Pulverulento	Faixas de diâmetro ( $\mu\text{m}$ )	Velocidades de compressão (rpm)	Velocidades de desprendimento (rpm)
Comprimido de Celulose Microcristalina	Celulose Microcristalina	9 – 15	1000 2000 5000	1000
		15,1 – 22		3000
		22,1 – 30		5000
		30,1 – 42		7000
		42,1 – 60		9000
Membrana Filtrante 0,2 $\mu\text{m}$				11000
				13000
				14000

Depois da consolidação das partículas na superfície do substrato, os discos de prova eram levados a um microscópio óptico (Olympus BX60) e o analisador de imagens (Image Pro-Plus 7.0) utilizado para a realização da contagem das partículas dos materiais pulverulentos.

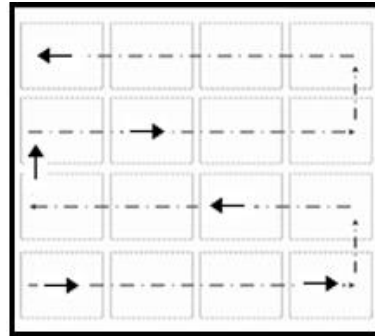
Em seguida, os discos de prova retornavam à microcentrífuga para realizar o desprendimento das partículas. A força centrífuga era usada para superar a adesão das partículas no substrato. Agora, os discos de prova eram orientados para que as superfícies empoeiradas fossem posicionadas de tal forma que a força centrífuga atuasse primeira na superfície e em seguida nas partículas. Após a aplicação da força de desprendimento, o número de partículas que permaneciam aderidas sobre a superfície era determinado.

Felicetti e colaboradores (2004b) demonstraram através de uma investigação experimental que a variação no tempo utilizado no desprendimento das partículas sobre o substrato não interferiu no valor da força de adesão. Desta forma, para facilitar a aquisição dos resultados experimentais, atribuiu-se o tempo de aplicação da velocidade de compressão e a velocidade de desprendimento sobre os discos de prova de 1 minuto.

Durante a fase de separação (aplicação velocidade de desprendimento), o disco foi exposto a velocidades de rotação crescentes e conseqüentemente forças centrífugas crescentes. A cada passo do aumento da velocidade rotacional, as fotos das imagens das partículas remanescentes nas superfícies dos substratos eram adquiridas, sendo comparadas com as imagens das partículas aderidas na compressão. Para isso utilizou-se o microscópio óptico (Olympus BX60) e o analisador de imagens (Image Pro-Plus 7.0).

Um padrão pré-determinado de movimentação do substrato no microscópio foi adotado ao tirar as fotos para evitar que uma mesma partícula fosse fotografada mais de uma vez, conforme mostra a Figura 3.12.

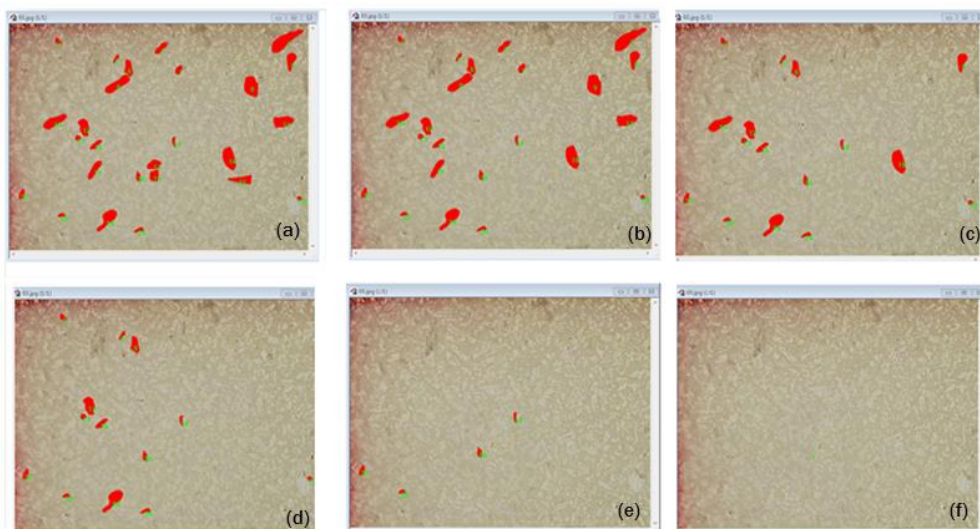
Figura 3.12 – Desenho esquemático do padrão de movimentação do substrato no microscópio adotado ao se tirarem fotos do substrato.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

A Figura 3.13 mostra o desprendimento das partículas de celulose microcristalina, com o aumento da velocidade de desprendimento para o substrato de comprimido de celulose microcristalina.

Figura 3.13 – Partículas aderidas na superfície após serem aplicadas velocidades de compressão de (a) 1000 rpm e desprendimento de (b) 1000 rpm (c) 3000 rpm (d) 5000 rpm (e) 7000 rpm e (f) 9000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Uma distribuição da força de adesão foi obtida aumentando-se a velocidade de desprendimento consecutivamente após cada contagem.

Os valores de força de adesão foram calculados usando-se a Equação 2.19. A força centrífuga aplicada na partícula durante a centrifugação pode ser determinada pela equação 2.20.

A distância entre o eixo de rotação da centrífuga e a superfície do substrato usada foi 0,57 m. A massa média de partícula foi obtida pela equação:

$$m = \rho_p \cdot V_p \quad (3.1)$$

sendo  $\rho_p$  densidade da partícula e o  $V_p$  seu volume da partícula

A frequência de centrifugação  $f_c$  (rpm) foi convertida para velocidade angular  $\omega$  ( $\text{rad s}^{-1}$ ) através da equação:

$$\omega = f_c \pi / 30 \quad (3.2)$$

Já o volume da partícula com formatos irregulares distantes de uma esfera, como é o caso da partícula de celulose microcristalina, pode ser calculado pela seguinte equação:

$$V_p = \frac{4 A r_p}{3} \quad (3.3)$$

Sendo que  $A$  é a área projetada da partícula e  $r_p$  o raio da partícula.

A Equação 3.3, testada por Banda (2002) em seu trabalho, foi utilizada para evitar que o erro existente no cálculo do valor do volume das partículas de celulose microcristalina, devido ao seu formato irregular, fosse bem maior por estar elevado à potência de três.

O diâmetro médio da partícula foi obtido pela média do maior e do menor diâmetro da partícula medido a cada dois graus de intervalo passando através do centroide da partícula, conforme mostra a figura. A área projetada da partícula e o diâmetro médio foram obtidos

através do analisador de imagens Image-Pro Plus 7.0. Foi utilizada uma calibração compatível com a lente do microscópio óptico para se aferir o software.

Figura 3.14 – Definição de diâmetro médio do analisador de imagens Image-Pro Plus 7.0.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Neste estudo a força de adesão experimental obtida entre a partícula de celulose microcristalina e os dois substratos foram comparados com a força de adesão teórica calculada pelos modelos mecânicos JKR e DMT, através das Equações 2.12 e 2.13. Para a determinação do trabalho de adesão ( $W_A$ ), calculado através da Equação 2.14, foi necessária uma busca na literatura dos valores de tensão superficial ( $\gamma$ ) tanto dos substratos quanto do material particulado utilizados nos experimentos. Os dados de tensão superficial são apresentados na Tabela 3.3.

Tabela 3.3 – Tensão superficial dos componentes da adesão.

Material	$\gamma$ (mJ/m <sup>2</sup> )
Acetato de celulose <sup>[1]</sup>	45,9
Celulose microcristalina <sup>[2]</sup>	58,75

[1] Brandrup (1989); [2] R. Drew (2005)

Finalizando a metodologia, serão apresentados os resultados obtidos nos experimentos.

---

## 4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Conforme já mencionado, foram utilizados nos experimentos com a técnica centrífuga dois substratos: uma membrana filtrante de éster-celulose e um comprimido de celulose microcristalina. O material pulverulento usado foi a celulose microcristalina.

Para cada substrato foram aplicadas velocidades de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm e para cada substrato e para cada velocidade de compressão foram aplicadas velocidades de desprendimento de 1000, 3000, 5000, 7000, 9000, 11000, 13000 e 14000 rpm. As faixas de diâmetro das partículas de celulose microcristalina utilizadas nos experimentos foram: 9 – 15, 15,1 – 22, 22,1 – 30, 30,1 – 42 e 42,1 – 60  $\mu\text{m}$ .

Neste trabalho foram analisados dois sistemas distintos:

- 1) Comprimido de celulose microcristalina (substrato) e celulose microcristalina (material particulado);
- 2) Membrana Filtrante de éster celulose 0,2  $\mu\text{m}$  (substrato) e celulose microcristalina (material particulado).

Depois de desenvolvida a metodologia, descrita no item 3.4, e obtidos os dados experimentais, foram determinados para cada um dos sistemas: o desprendimento das partículas com a variação da velocidade angular de desprendimento; o desprendimento das partículas com a variação da força de adesão; a mediana geométrica de força de adesão; a relação entre a força de adesão e o diâmetro da partícula aderida; e a relação entre a força de adesão e a velocidade de compressão. Num segundo momento, foi realizada uma comparação dos dados experimentais com os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos mecânicos de Derjaguin, Muller e Toporov (DMT) e Johnson, Kendall e Roberts (JKR).

### 4.1. Ensaios com o comprimido de celulose microcristalina (substrato)

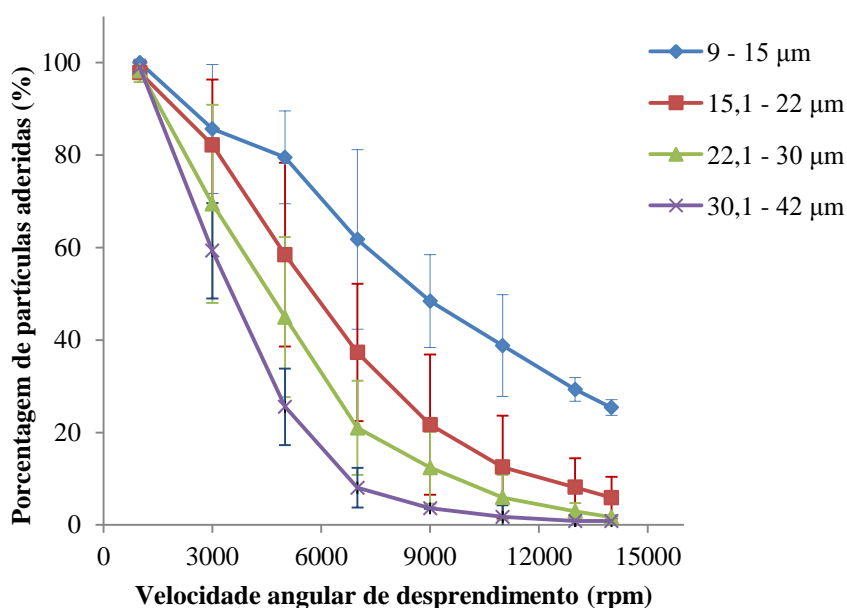
Neste item serão apresentados os resultados obtidos para o substrato comprimido de celulose microcristalina. Em todos os ensaios foram utilizadas todas as condições experimentais apresentadas na Tabela 3.2.

### 4.1.1 Desprendimento das partículas com a variação da velocidade angular de desprendimento

Os gráficos de porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função das velocidades angulares de desprendimento, para as cinco faixas de diâmetro das partículas estudadas, após a aplicação das velocidades de compressão de 1000, 2000 e 1500 rpm, estão representados nas Figuras 4.1 a 4.3, respectivamente. As barras de erro correspondem ao desvio padrão.

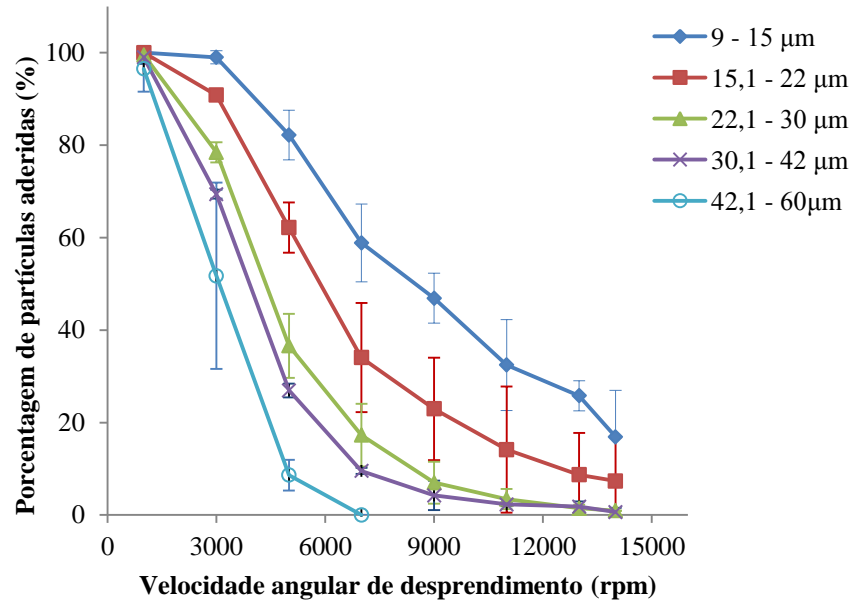
Na técnica centrífuga, uma partícula é removida da superfície somente se a força centrífuga aplicada à partícula excede a força de adesão entre a partícula e a superfície. Por exemplo, na Figura 4.1 para velocidade angular de desprendimento 3000 rpm, cerca de 15% das partículas na faixa de diâmetro 9 – 15  $\mu\text{m}$  foram removidas pela força centrífuga; isso significa que para as 85% restantes, a força centrífuga aplicada foi menor que a força de adesão.

Figura 4.1 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.



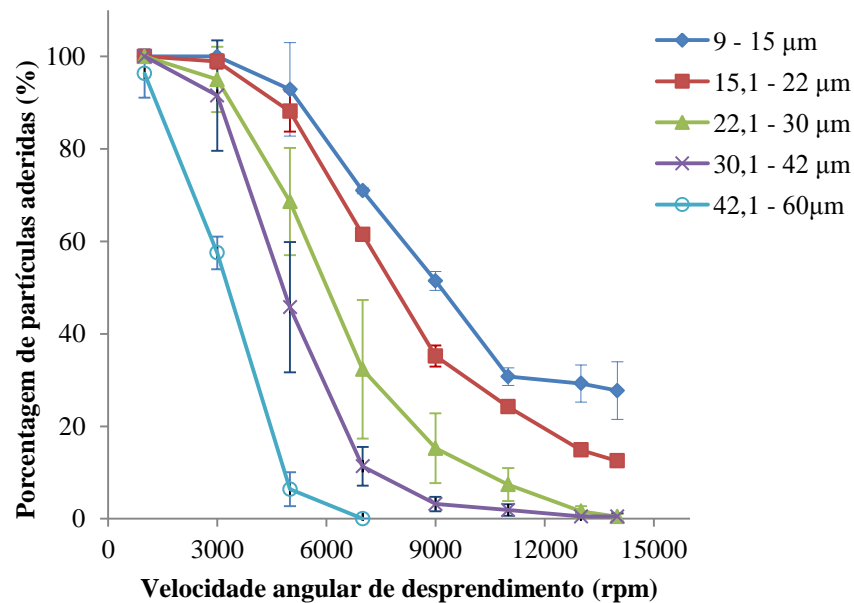
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.2 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.3 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

É possível perceber, através das curvas dos gráficos nas Figuras 4.1 a 4.3, que o diâmetro das partículas influenciou em seu desprendimento do substrato com a variação da velocidade angular da centrífuga, o que permitiu inferir que a granulometria das partículas tem influência direta na força de adesão. Nota-se, também, que o aumento da velocidade de compressão tem influência no processo de desprendimento das partículas, sendo que quanto maior a velocidade de compressão, mais fortemente as partículas ficam aderidas sobre o substrato.

Observa-se também, nas Figuras 4.1 a 4.3 que as partículas de menor diâmetro apresentaram uma maior dificuldade em se soltarem, quando aplicadas velocidades de desprendimento menores, comparando-se às partículas de diâmetros maiores.

#### **4.1.2. Desprendimento das partículas com a variação da força de adesão**

A força de adesão entre partícula e superfície foi calculada para cada velocidade de desprendimento utilizada nesse estudo, usando-se as Equações 2.19 e 2.20, que se baseiam no princípio de que, no equilíbrio, a força de adesão se iguala em magnitude à força centrífuga.

$$F_{\text{centrífuga}} = -F_{\text{adesão}} \quad (2.19)$$

sendo:

$$F_{\text{centrífuga}} = m \omega^2 r \quad (2.20)$$

A massa e o volume das partículas de celulose microcristalina foram obtidos utilizando-se a equação (3.1) e (3.3) e os resultados encontrados nesse estudo estão na Tabela 4.1.



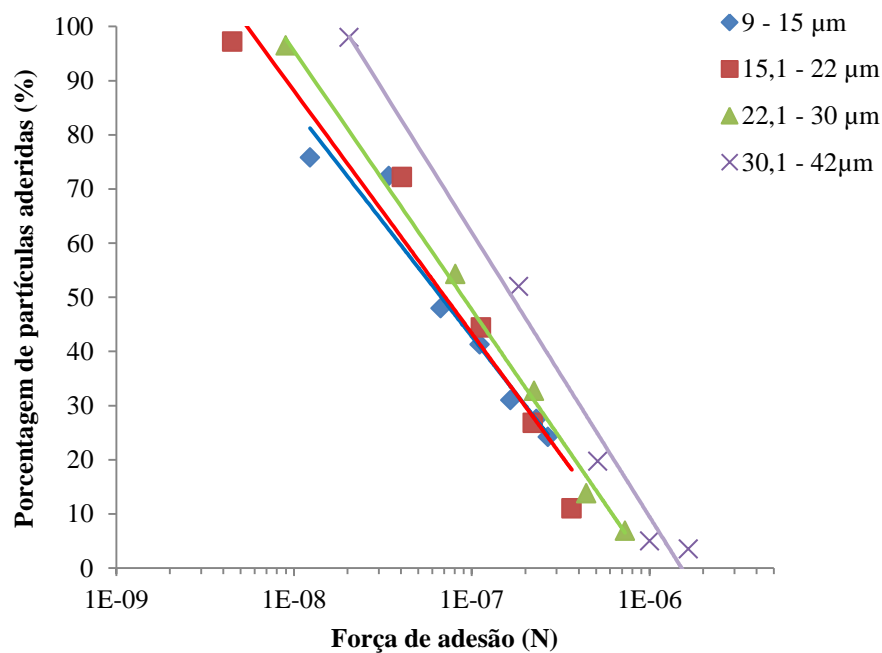
Tabela 4.1 – Massa média para partícula de celulose microcristalina.

Faixa de diâmetro (µm)	Diâmetro médio (µm)	Massa média (kg)	Volume médio (m <sup>3</sup> )
9 – 15	13,8	$2,19 \times 10^{-12}$	$1,35 \times 10^{-15}$
15,1 – 22	20,1	$7,22 \times 10^{-12}$	$4,46 \times 10^{-15}$
22,1 – 30	25,5	$1,44 \times 10^{-11}$	$8,9 \times 10^{-15}$
30,1 – 42	35,5	$3,28 \times 10^{-11}$	$2,0 \times 10^{-14}$
42,1 – 60	49,1	$8,89 \times 10^{-11}$	$5,5 \times 10^{-14}$

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

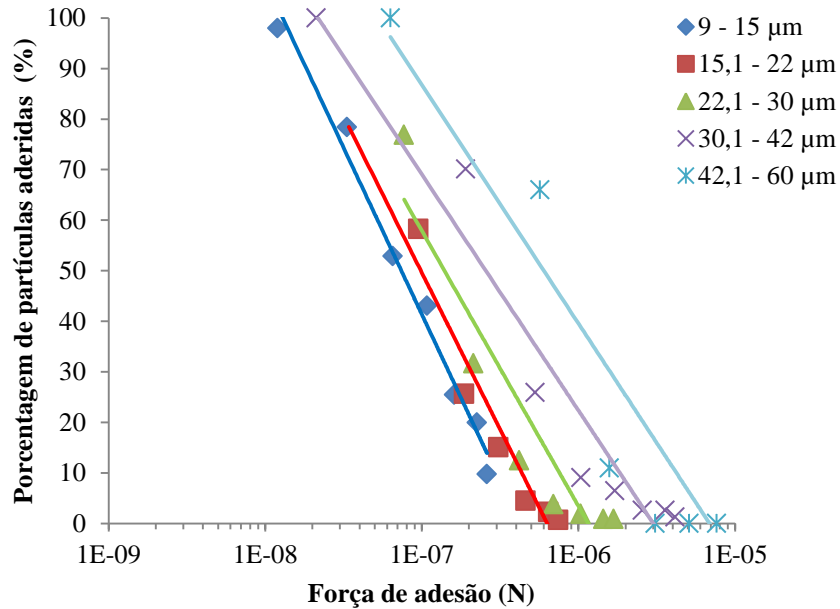
Associando as forças de adesão, determinadas através da Equação 2.19 com as respectivas porcentagens de partículas aderidas no substrato, obtidas através da contagem de partículas realizadas pelo software Image-Pro Plus 7.0, foi possível construir o gráfico das Figuras 4.4 a 4.6 que apresentam a porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do substrato, em função da força de adesão. Os gráficos foram construídos para as cinco faixas de diâmetro de partículas estudadas após a aplicação das forças de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm. Na Figura 4.4, não houve quantidade de partículas na faixa de diâmetro 42 – 60 µm suficiente para traçar a curva.

Figura 4.4 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.



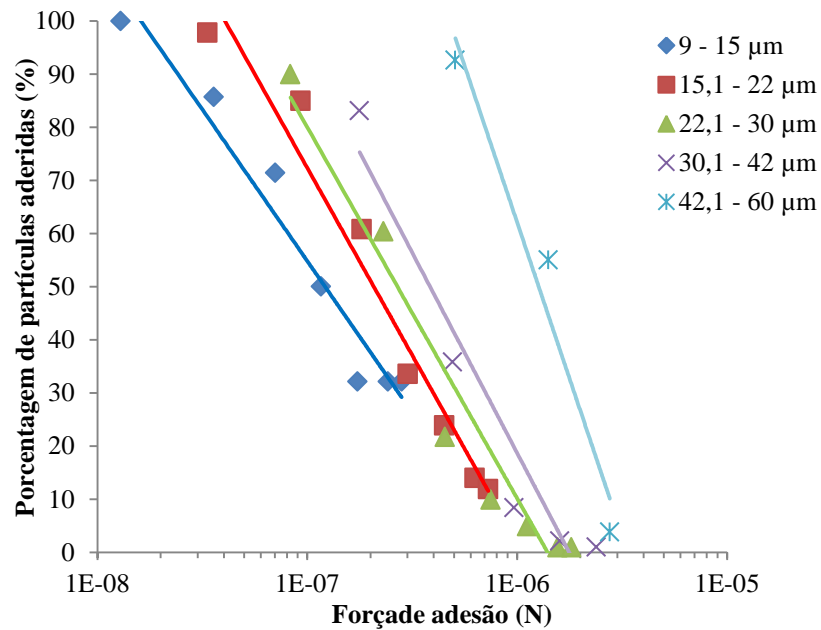
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.5 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.6 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas no comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

As Figuras 4.4 a 4.6 mostram que a força de adesão entre as partículas e a superfície do substrato aumentou com o diâmetro das partículas.

Utilizando-se a mesma metodologia experimental com a qual foram construídos os gráficos da Figura 4.4 a 4.6 foram construídos também os gráficos das Figuras A.1 a A.3, que estão apresentadas no Apêndice A. Essas figuras representam repetições experimentais dos testes com a celulose microcristalina aderida no comprimido de celulose microcristalina, com o propósito de se confirmarem os resultados encontrados. Foi possível constatar, em todas as figuras do apêndice A, o mesmo comportamento observado na Figura 4.4 a 4.6.

#### **4.1.3 Relação entre a força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e comprimido de celulose microcristalina e o diâmetro da partícula**

Visando-se obter uma relação entre os diâmetros das partículas de celulose microcristalina e a força destas no comprimido de celulose microcristalina, foram calculadas as medianas geométricas da força de adesão, com seus respectivos desvios padrões geométricos.

Os resultados de força de adesão foram representados por gráficos e para cada curva de porcentagem de partículas aderidas em função da força de adesão determinou-se a força de adesão média (mediana geométrica). Lam e Newton (1991) definiram a mediana geométrica da força de adesão como a força encontrada quando, após os experimentos com a centrífuga, há 50% de probabilidade das partículas permanecerem aderidas ao substrato. A mediana geométrica é utilizada para representar a força de adesão média de uma partícula no substrato e pode ser determinada graficamente ou através das retas de ajuste. O desvio padrão geométrico,  $\sigma_g$ , foi calculado utilizando-se a equação:

$$\sigma_g = \frac{\textit{mediana geométrica de adesão}}{\textit{força de adesão para 16 \% de partículas aderidas}} \quad (4.1)$$

Na equação (4.1), o valor da força que equivale a 16% de probabilidade de partículas que permanecem aderidas ao substrato, também pode ser determinado através das retas de

ajuste ou através dos gráficos de porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do substrato, em função da força de adesão.

Esse procedimento foi utilizado para calcular a mediana da força de adesão e seus respectivos desvios padrões geométricos para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho.

Os valores da mediana geométrica e dos respectivos desvios padrões estão apresentados na Tabela 4.2.

Tabela 4.2 – Resultado final da força de adesão para os testes realizados com comprimido de celulose microcristalina.

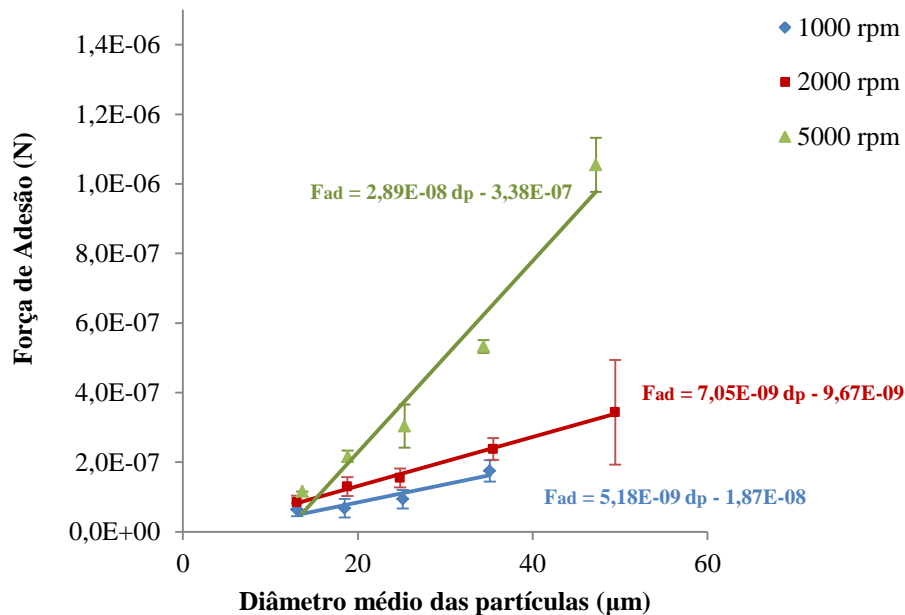
<b>Velocidade de compressão (rpm)</b>	<b>Faixa de diâmetro (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	<b>Diâmetro médio das partículas (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	<b>Mediana geométrica da força de adesão (N)</b>	<b>Desvio padrão geométrico</b>
1000	9 - 15	13,1	6,26E-08	0,33
	15,1 - 22	18,5	6,80E-08	0,23
	22,1 - 30	25,2	9,21E-08	0,23
	30,1 - 42	35,1	1,86E-07	0,26
	42,1 - 60	-	-	-
2000	9 - 15	13,1	8,49E-08	0,30
	15,1 - 22	18,8	1,30E-07	0,29
	22,1 - 30	24,9	1,55E-07	0,26
	30,1 - 42	35,5	2,38E-07	0,21
	42,1 - 60	49,5	3,44E-07	0,21
5000	9 - 15	13,7	1,16E-07	0,25
	15,1 - 22	18,9	2,17E-07	0,33
	22,1 - 30	25,6	3,04E-07	0,36
	30,1 - 42	34,4	5,33E-07	0,39
	42,1 - 60	47,3	1,06E-06	0,55

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

A Tabela 4.2 apresenta os resultados da mediana geométrica da força de adesão e seus respectivos desvios padrões geométricos após a aplicação da velocidade de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm utilizando o substrato comprimido de celulose microcristalina. O diâmetro médio foi obtido pela média dos diâmetros das partículas fornecida pelo analisador de imagens Image-Pro Plus 7.0. Nessa tabela, verifica-se que a força de adesão entre a partícula e o substrato aumenta com o aumento do tamanho das partículas e com o aumento da velocidade de compressão. Nota-se também, que os desvios padrões foram baixos, indicando que os resultados obtidos com a microcentrífuga foram satisfatórios.

A Figura 4.7 apresenta gráfico de força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas, após a aplicação da velocidade de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho.

Figura 4.7 – Força de adesão média em função do diâmetro médio da partícula para o substrato de celulose microcristalina.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se, na Figura 4.7, que a força de adesão aumenta linearmente com o diâmetro médio das partículas dentro da faixa de diâmetro estudado e que o aumento da velocidade de compressão tem uma influência sobre o processo de desprendimento das partículas, ou seja,

quanto maior a velocidade de compressão mais fortemente as partículas ficam aderidas ao substrato.

A Figura 4.7 mostra também as correlações lineares obtidas para as três velocidades de compressão 1000, 2000 e 5000 rpm, onde  $F_{ad}$  e  $D_p$  representam respectivamente a força de adesão média (em Newton) e o diâmetro médio das partículas (em metro). A relação de proporcionalidade direta obtida na Figura 4.7 mostra que dentro da faixa de diâmetro das partículas utilizada neste estudo, a força de adesão variou de acordo com a primeira potência do raio de partícula. Isso implica que as interações envolvidas neste estudo eram governadas principalmente pelas forças de van der Waals. A Tabela 4.3 apresenta os coeficientes de determinação para o substrato de celulose microcristalina, dos gráficos de força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas após a aplicação das velocidades de compressão de 1000, 2000, e 5000 rpm.

Tabela 4.3 – Coeficiente de determinação dos gráficos de força de adesão em função do diâmetro médio das partículas, o substrato de celulose microcristalina após a aplicação das velocidades de compressão de 1000, 2000, e 5000 rpm.

Velocidade de compressão (rpm)	Coeficiente de determinação ( $R^2$ )
1000	0,90
2000	0,99
5000	0,96

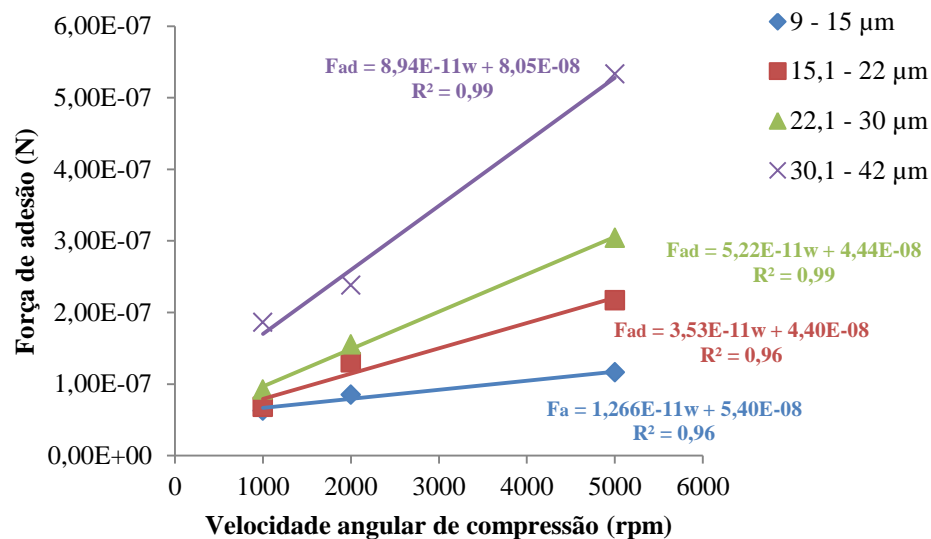
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Pode-se dizer que os valores os coeficientes de determinação para o substrato de celulose microcristalina apresentados na Tabela 4.3 apresentaram valores próximos de 1, indicando um bom ajuste linear dos dados experimentais. Salazar Banda et al. (2007) obtiveram resultados semelhantes usando de concentrado fosfático e polvilho doce com um diâmetro médio variando de 13 a 45  $\mu\text{m}$  e 12 a 26  $\mu\text{m}$ , respectivamente, utilizando a técnica centrífuga. Ermis et al. (2011) investigaram o efeito do tamanho de partícula de alimentos na faixa de diâmetro de 63 a 250  $\mu\text{m}$  em superfície de alimentos usando a técnica centrífuga e também obtiveram resultados semelhantes. Bradley (1932) indicou uma variação direta entre a força de adesão e tamanho de partícula em seu estudo com quartzo e borato. Este mesmo comportamento foi observado no trabalho desenvolvido Lam e Newton (1992) que avaliaram o efeito do tamanho da partícula no comportamento da força de adesão de dois pós-

farmacêuticos, amido 1500 e lactose pulverizada, depois de uma força de compressão inicial aplicada para forçar as partículas sobre a superfície de um substrato de aço. Resultado semelhante também foi observado no trabalho desenvolvido por Felicetti (2008) que estudou a influência do tamanho das partículas de material pulverulento sobre a força de adesão em diferentes substratos usando a técnica centrífuga.

A Figura 4.8 apresenta o gráfico da força de adesão entre as partículas e substrato de comprimido em função da velocidade de compressão para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho.

Figura 4.8 – Força de adesão em função da velocidade angular de compressão para cada faixa de tamanho para o substrato de celulose microcristalina.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se na Figura 4.8 que a aplicação da velocidade angular de compressão possui influência direta na força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e o substrato comprimido de celulose microcristalina. A Figura 4.8 mostra também as correlações lineares e os respectivos coeficientes de determinação,  $R^2$ , para cada faixa de diâmetro utilizada neste trabalho, onde  $F_a$  e  $w$  representam respectivamente a força de adesão média (em Newton) e a velocidade angular de compressão ( $\text{rad s}^{-1}$ ).

Os valores dos coeficientes de determinação, mostrados na Figura 4.8 apresentaram valores próximos de 1, para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho, indicando um bom ajuste linear dos dados experimentais. Lam e Newton (1991) investigaram o efeito da aplicação da força de compressão no comportamento da força de adesão de alguns excipientes farmacêuticos usando a força centrífuga e obtiveram comportamento similar.

#### **4.2. Ensaio com a membrana filtrante de éster celulose com 0,2 µm de porosidade (substrato)**

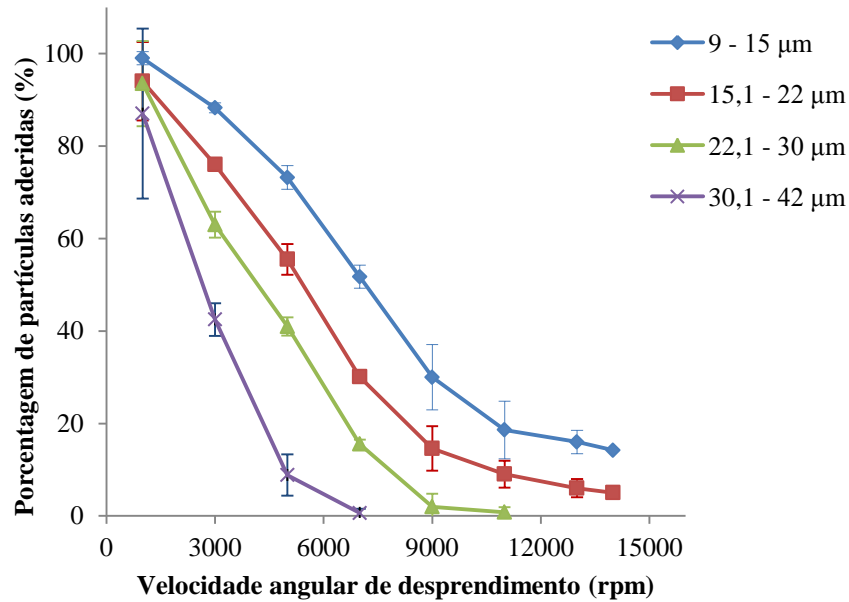
Neste item serão apresentados os resultados obtidos para o substrato membrana filtrante de éster celulose. Em todos os ensaios foram testadas todas as condições experimentais apresentadas na Tabela 3.2.

##### **4.2.1 Desprendimento das partículas com a variação da velocidade angular de desprendimento**

Assim como foi feito para o substrato de comprimido de celulose microcristalina, realizou-se o mesmo procedimento experimental para o substrato membrana filtrante. As Figuras 4.9 a 4.11 mostram os resultados obtidos para a porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante, em função das velocidades angulares de desprendimento após a aplicação das velocidades de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, para todas as faixas de diâmetros utilizadas nestes trabalho. Cada ponto representa um valor médio obtidos a partir dos experimentos realizados e as barras de erro correspondem ao desvio padrão.

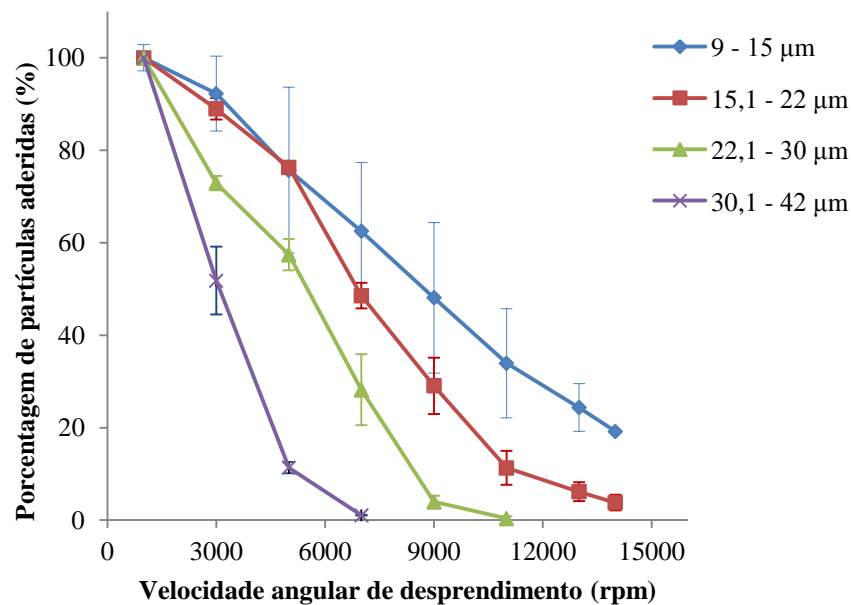


Figura 4.9 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície membrana filtrante de éster celulose em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.



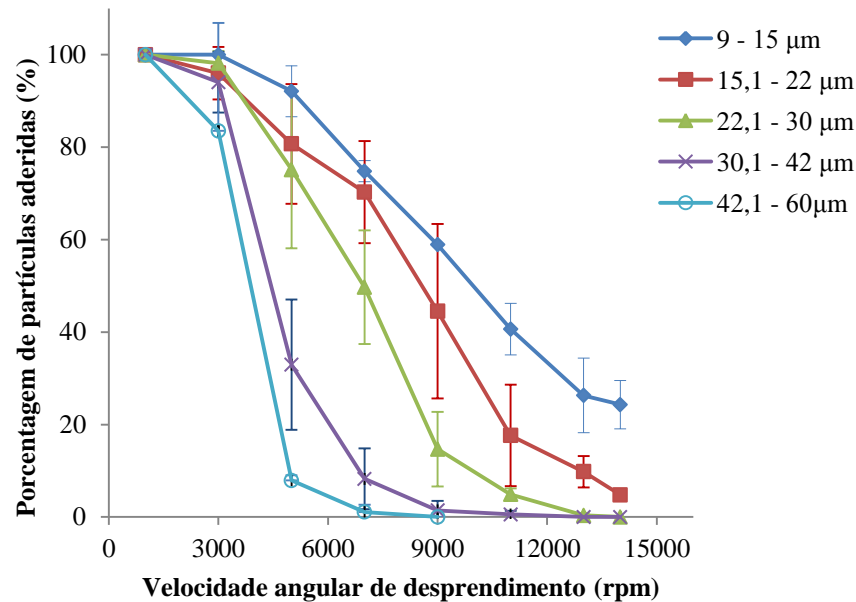
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.10 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície membrana filtrante de éster celulose em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.11 – Porcentagem de partículas aderidas na superfície membrana filtrante de éster celulose em função da velocidade angular de desprendimento após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Os gráficos da Figura 4.9 a 4.11 apresentaram o mesmo comportamento que os gráficos das Figuras 4.1 a 4.3, ou seja, o diâmetro das partículas influenciou em seu desprendimento do substrato com a variação da velocidade angular da centrífuga.

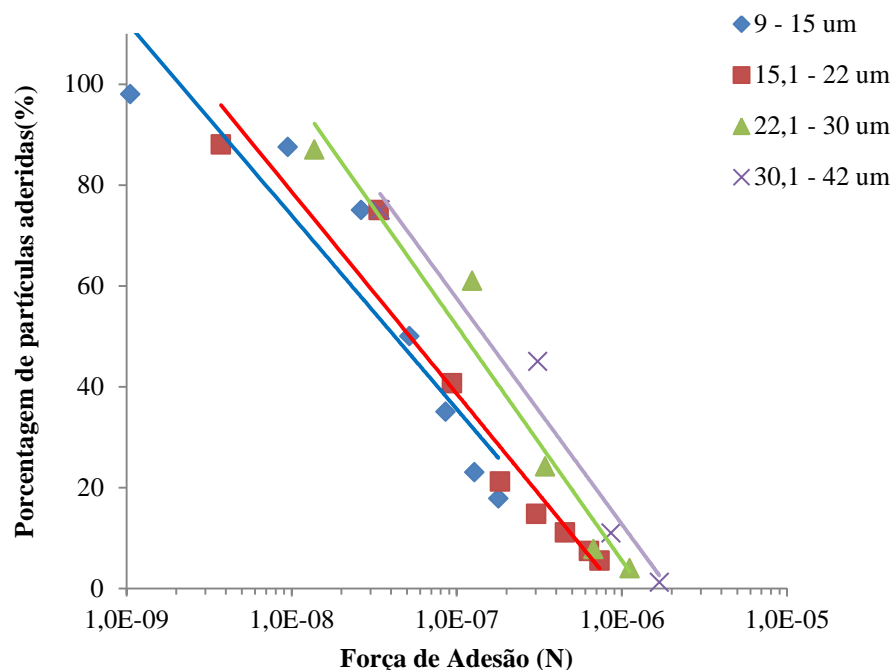
#### 4.2.2. Desprendimento das partículas com a variação da força de adesão

Assim como foi feito para o substrato de comprimido de celulose microcristalina, realizou-se o mesmo procedimento experimental para a membrana filtrante de éster celulose. Os resultados obtidos da distribuição de partículas aderidas em relação à força de adesão foram representados por gráficos de porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do substrato, em função da força de adesão. Para a construção destes gráficos foi utilizada a mesma metodologia empregada para o substrato comprimido celulose microcristalina.

As Figuras 4.12 a 4.14 apresentam os gráficos de força de adesão para a celulose microcristalina aderida na membrana filtrante. Na Figura 4.12 e 4.13 não houve quantidade de partículas com diâmetro 42 – 60  $\mu\text{m}$  suficiente para traçar a curva.

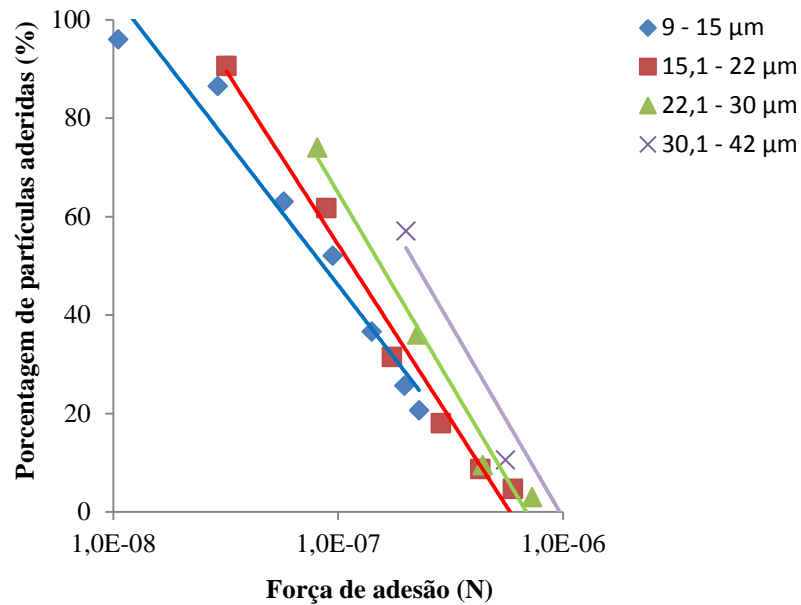
Os gráficos da Figura 4.12 a 4.14, apresentaram o mesmo comportamento que os gráficos das Figuras 4.4 a 4.6, a força de adesão das partículas da celulose microcristalina aumentou com o aumento das partículas sobre a superfície do substrato de membrana filtrante. Utilizando-se a mesma metodologia experimental com a qual foram construídos os gráficos da Figura 4.12 a 4.14 foram construídos também os gráficos das Figuras A.4 a A.6, que estão apresentadas no Apêndice A. Essas figuras representam repetições experimentais dos testes com a celulose microcristalina aderida na membrana filtrante, com o propósito de se confirmarem os resultados encontrados. Foi possível constatar, em todas as figuras do Apêndice A, o mesmo comportamento observado na Figura 4.12 a 4.14.

Figura 4.12 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.



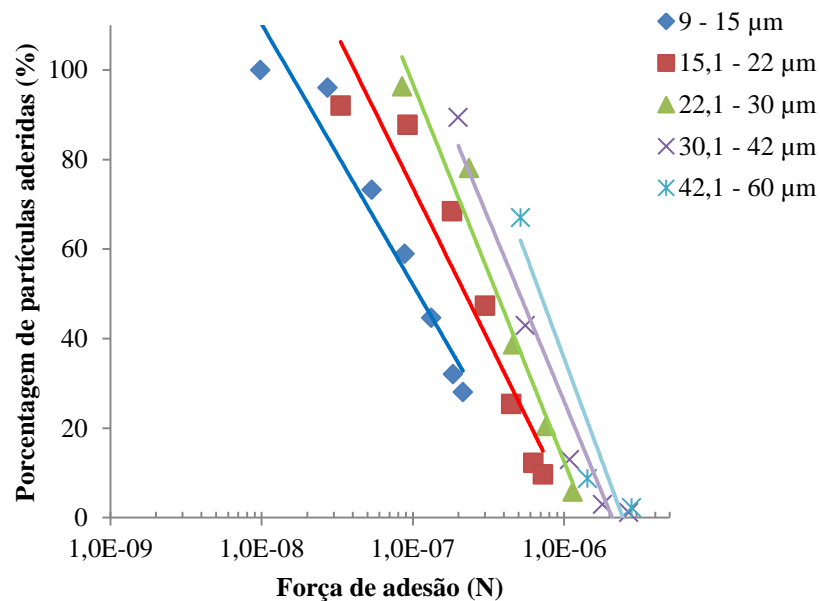
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.13 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.14 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

### 4.2.3 Relação entre a força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e membrana filtrante e o diâmetro da partícula

Visando-se obter uma relação entre os diâmetros das partículas de celulose microcristalina e a força destas na membrana filtrante, foram calculadas as medianas geométricas da força de adesão, com seus respectivos desvios padrões geométricos. Os valores da mediana geométrica e dos respectivos desvios padrões estão apresentados na Tabela 4.4.

Tabela 4.4 – Resultado final da força de adesão média para os testes realizados com o substrato membrana filtrante.

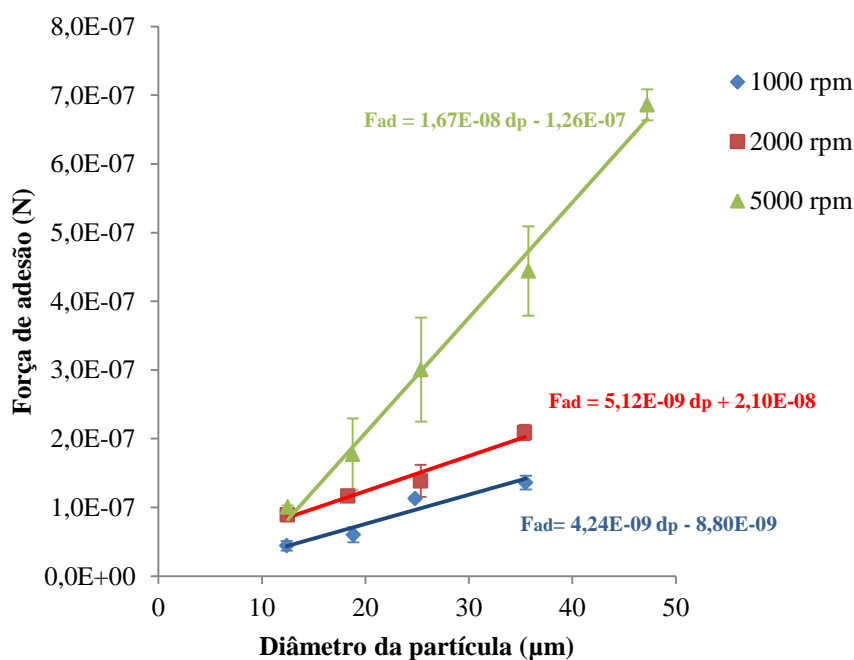
<b>Velocidade angular de compressão (rpm)</b>	<b>Faixa de diâmetro (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	<b>Diâmetro médio das partículas (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	<b>Mediana geométrica da força de adesão (N)</b>	<b>Desvio padrão geométrico</b>
1000	9 - 15	12,4	4,41E-08	0,22
	15,1 - 22	18,9	6,01E-08	0,19
	22,1 - 30	24,8	1,13E-07	0,24
	30,1 - 42	35,5	1,36E-07	0,22
	42,1 - 60	-	-	-
2000	9 - 15	12,5	8,91E-08	0,26
	15,1 - 22	18,3	1,17E-07	0,30
	22,1 - 30	25,3	1,39E-07	0,28
	30,1 - 42	35,4	2,09E-07	0,48
	42,1 - 60	-	-	-
5000	9 - 15	12,5	1,01E-07	0,26
	15,1 - 22	18,8	1,77E-07	0,30
	22,1 - 30	25,4	3,01E-07	0,30
	30,1 - 42	35,8	4,44E-07	0,31
	42,1 - 60	47,2	6,86E-07	0,36

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

A Tabela 4.4 apresenta os resultados da mediana geométrica da força de adesão e seus respectivos desvios padrões geométricos, para a celulose microcristalina após a aplicação da velocidade angular de compressão de 1000, 2000 e 1500 rpm utilizando o substrato membrana filtrante. Observa-se que, a exemplo do que aconteceu com o substrato de celulose microcristalina, a força de adesão entre a partícula e o substrato aumenta com o aumento do tamanho das partículas e com o aumento da velocidade de compressão. Nota-se, também, que os desvios padrões foram baixos, indicando que os resultados obtidos com a microcentrífuga foram satisfatórios.

Partindo-se dos dados da Tabela 4.4, foi possível construir o gráfico da Figura 4.15 que apresenta a força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e membrana filtrante em função do diâmetro médio das partículas após a aplicação da velocidade de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm.

Figura 4.15 – Força de adesão em função do diâmetro médio da partícula celulose microcristalina e o substrato membrana filtrante e o diâmetro da partícula.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se na Figura 4.15 que a força de adesão aumentou linearmente com o diâmetro das partículas, como era esperado, dentro da faixa de diâmetro estudado e que o aumento da velocidade de compressão tem uma influência sobre o processo de

desprendimento das partículas, ou seja, quanto maior a velocidade de compressão mais fortemente as partículas ficam aderidas ao substrato.

A Figura 4.15 mostra também as correlações lineares obtidas para as três velocidades de compressão 1000, 2000 e 5000 rpm, para o substrato de membrana filtrante de éster celulose, onde  $F_{ad}$  e  $d_p$  representam respectivamente a força de adesão média (em Newton) e o diâmetro da partícula (em metro).

A Tabela 4.5 apresenta os coeficientes de determinação,  $R^2$ , para o substrato de celulose microcristalina, dos gráficos de força de adesão em função do diâmetro médio das partículas após a aplicação das forças de compressão de 1000, 2000, e 5000 rpm.

Tabela 4.5 – Coeficiente de determinação dos gráficos de força de adesão em função do diâmetro médio das partículas, o substrato de membrana filtrante após a aplicação das forças de compressão de 1000, 2000, e 5000 rpm.

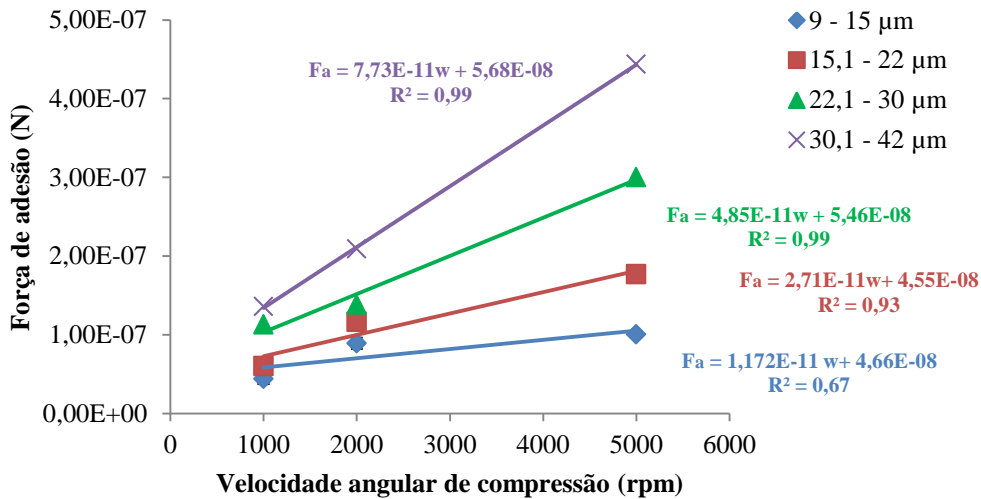
Velocidade de compressão (rpm)	Coeficiente de determinação ( $R^2$ )
1000	0,92
2000	0,97
5000	0,99

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Os valores os coeficientes de determinação para o substrato de membrana filtrante apresentados na Tabela 4.5, apresentaram valores próximos de 1, indicando um bom ajuste linear dos dados experimentais, como os obtidos para o substrato de celulose.

A Figura 4.16 apresenta o gráfico da força de adesão entre as partículas e substrato membrana filtrante em função da velocidade angular de compressão, para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho.

Figura 4.16 – Força de adesão em função da velocidade angular de compressão para cada faixa de tamanho para o substrato de membrana filtrante de éster celulose.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se na Figura 4.16 comportamento similar ao obtido apresentado para o substrato de celulose.

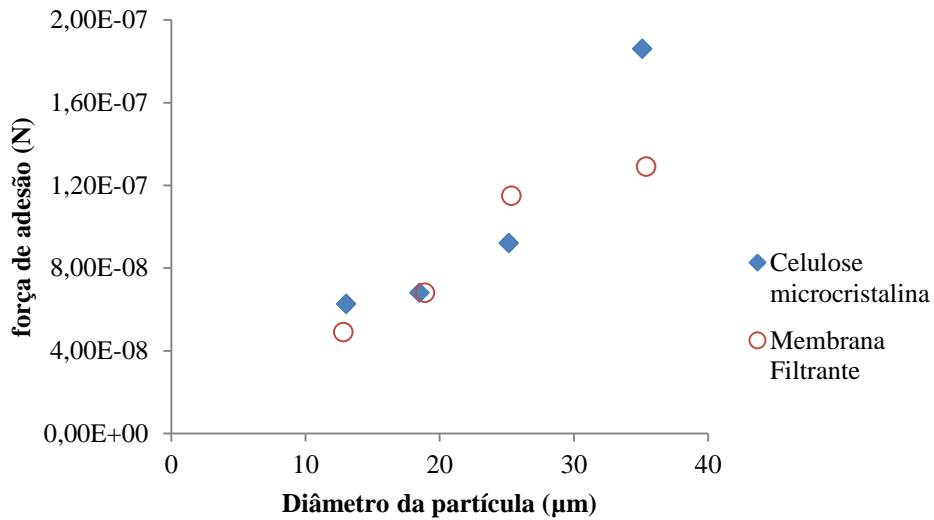
### 4.3. Comparação da força de adesão entre partículas de celulose microcristalina e os substratos de comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose

Uma primeira análise foi realizada com a comparação da força de adesão entre os substratos utilizados neste trabalho, visando verificar a influência da rugosidade destes na força de adesão. Apesar de ambos os substratos, comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose, possuírem superfície rugosas, o primeiro apresentam maior rugosidade, conforme mostrado na Figura 3.9.

As Figuras 4.17 a 4.19 mostram a força de adesão em função do diâmetro médio das partículas para os dois substratos após a aplicação da força de compressão press-on de 1000, 2000 e 5000 rpm, respectivamente.

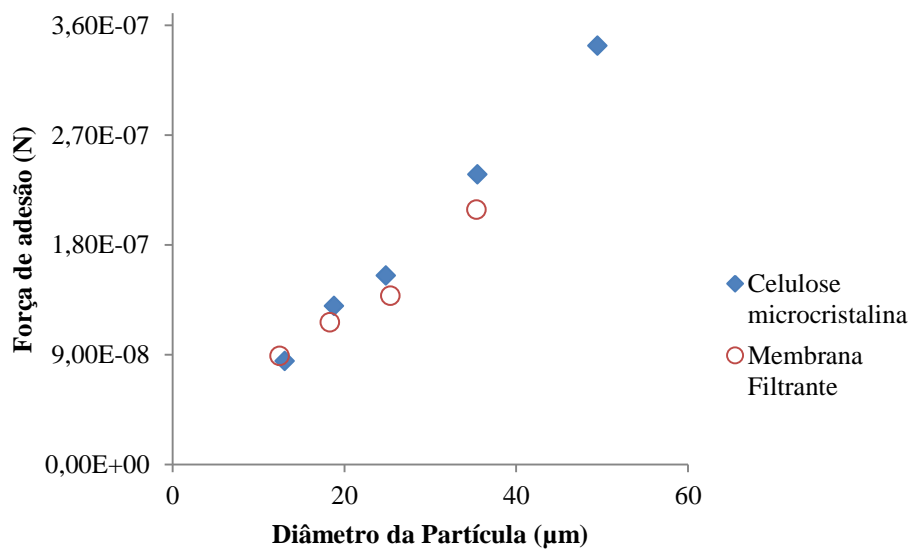


Figura 4.17 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os substratos comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose após aplicação de press-on de 1000 rpm.



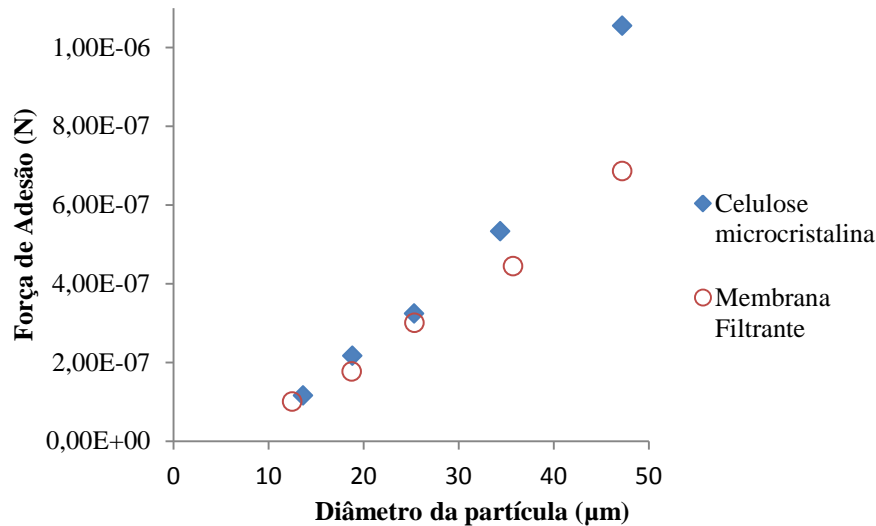
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.18 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os substratos comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose após aplicação de press-on de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.19 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os substratos comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante de éster celulose após aplicação de press-on de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Nas Figuras 4.17 a 4.19, observa-se que, para o mesmo diâmetro da partícula, a força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e o comprimido de celulose microcristalina foi maior do que a força de adesão da mesma partícula e a superfície membrana filtrante éster celulose principalmente para partículas maiores. A explicação de tal fenômeno pode ser justificada devido aos diferentes valores da rugosidade dos substratos, onde o valor da rugosidade do comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante são de 383,6 nm e 176,6 nm respectivamente.

A rugosidade presente na superfície dos materiais tem o efeito de diminuir a força de adesão entre os corpos em contato. Devido à superfície rugosa, a área de contato entre a partícula e o substrato diminui e a separação entre as duas superfícies de contato aumenta, o que resulta em diminuição da força de adesão. Portanto, a área de contato é um fator importante que influencia a adesão entre partícula-substrato. No entanto, quando a força de compressão “press-on” é aplicada, a pressão concentrada na área da superfície rugosa pode influenciar significativamente a força de adesão entre dois corpos. Isso pode causar deformação plástica nas asperezas e aumentar a área de contato, e conseqüentemente a força de adesão. Assim, após a aplicação da força “press-on”, a verdadeira área de contato entre a partícula celulose microcristalina e o comprimido de celulose microcristalina é maior do que

na membrana de éster de celulose o que proporciona maior força de adesão. Esse mesmo comportamento foi observado no trabalho realizado por Nguyen et al. (2010), que investigaram a força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e substrato de celulose microcristalina, utilizando a técnica centrífuga. Neste trabalho, duas superfícies compactadas foram preparadas a partir de pó de celulose microcristalina de frações de tamanhos diferentes, sendo uma de faixa de tamanho de 100 a 160  $\mu\text{m}$  utilizada para fazer comprimidos de superfície rugosa e outra de faixa inferior a 38  $\mu\text{m}$  utilizada para fazer comprimidos de superfície lisa. A força de adesão média de partículas de celulose microcristalina com superfície de celulose microcristalina rugosa e lisa foi de 63 e 40 nN, respectivamente.

Uma segunda análise foi realizada com a comparação da força de adesão de dois substratos inorgânicos de vidro e aço inoxidável, utilizando os resultados encontrados por LIMA (2011) que também utilizou como material pulverulento, a celulose microcristalina, as mesmas velocidades angulares de compressão e desprendimento e as mesmas faixas de diâmetro de partículas de celulose microcristalina. As Figuras 4.20 a 4.22 mostram a força de adesão em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os dois substratos, vidro e aço, após a aplicação da força de compressão press-on de 1000, 2000 e 5000 rpm, respectivamente.

Figura 4.20 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato de aço e vidro após aplicação de press-on de 1000 rpm.

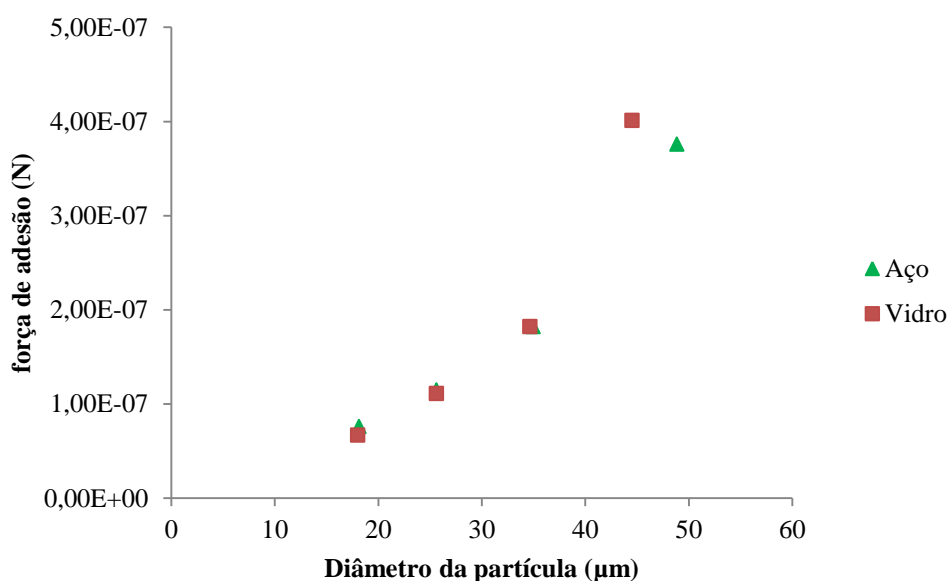
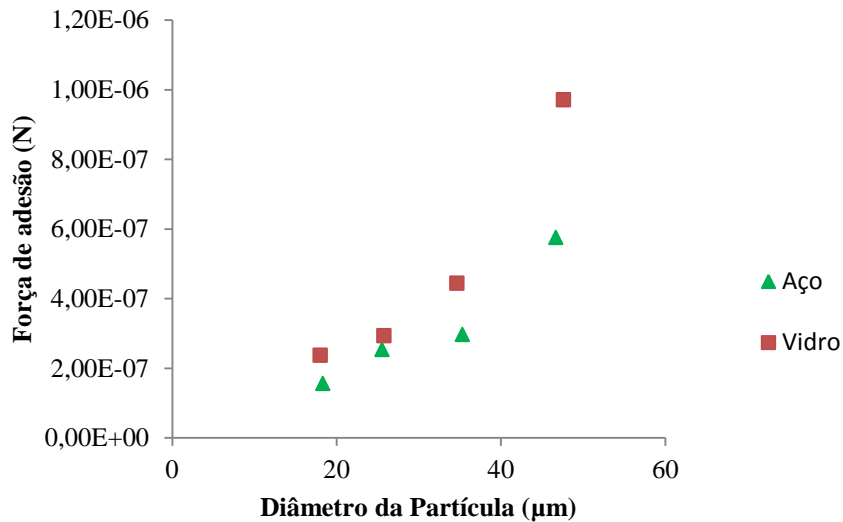
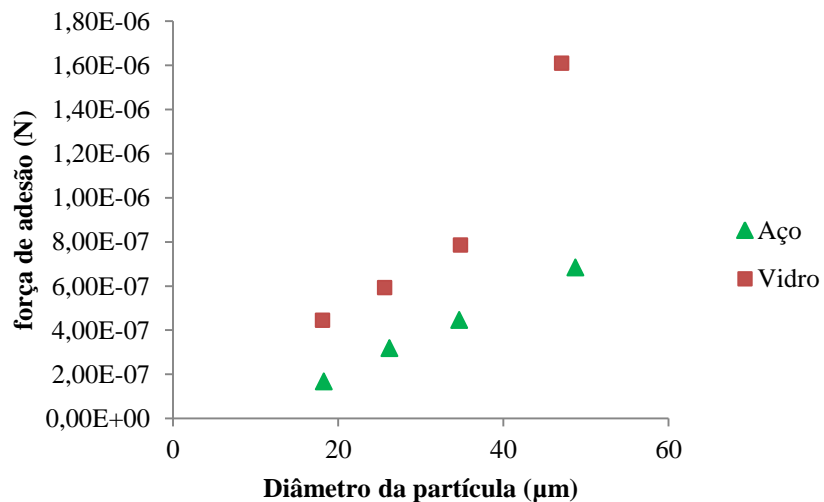


Figura 4.21 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato de aço e vidro após aplicação de press-on de 2000 rpm.



Fonte: Fonte: LIMA (2011)

Figura 4.22 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato aço e vidro após aplicação de press-on de 5000 rpm.



Fonte: LIMA (2011)

Através das Figuras 4.20 e 4.22 observa-se que, para o mesmo diâmetro da partícula, a força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e o vidro foi maior do que a força de adesão para a mesma partícula e o substrato de aço inoxidável. Isto pode ser justificado devido ao substrato de vidro possuir superfície mais lisa que a do aço com valores de rugosidade de 1,45nm e 47,86 nm, respectivamente. A diminuição da força de adesão com o aumento da rugosidade da superfície ocorre devido a força de Van der Waals diminuir com a redução na área de contato entre a partícula e a superfície do substrato (KRUPP, 1967). Isso

significa que a área de contato entre as partículas de celulose microcristalina e a superfície de aço inoxidável foi menor devido à diminuição da força de Vander Waals com a rugosidade do aço inoxidável que é maior que a do vidro. Esse comportamento foi observado no trabalho realizado por Takeuchi (2006) que utilizou a técnica centrífuga para estudar a força de adesão entre partícula de toner e um substrato de alumínio.

Uma terceira análise foi realizada com a comparação da força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e substratos inorgânicos de vidro e aço inoxidável, utilizando os resultados encontrados por Lima (2011) e os resultados da força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e os substratos orgânicos de comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose que foram utilizados neste estudo. Ou seja, foi realizada uma comparação da força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e duas superfícies lisas e inorgânicas (vidro e aço) e de duas superfícies rugosas e orgânicas (comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante).

As Figuras 4.23 a 4.25 mostram a força de adesão em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para os quatro substratos, comprimido de celulose microcristalina, membrana de filtrante, vidro e aço inoxidável após a aplicação da força de compressão press-on de 1000, 2000 e 5000 rpm, respectivamente.

Figura 4.23 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato comprimido de celulose microcristalina e substrato de membrana filtrante, vidro e aço inoxidável após aplicação de press-on de 1000 rpm.

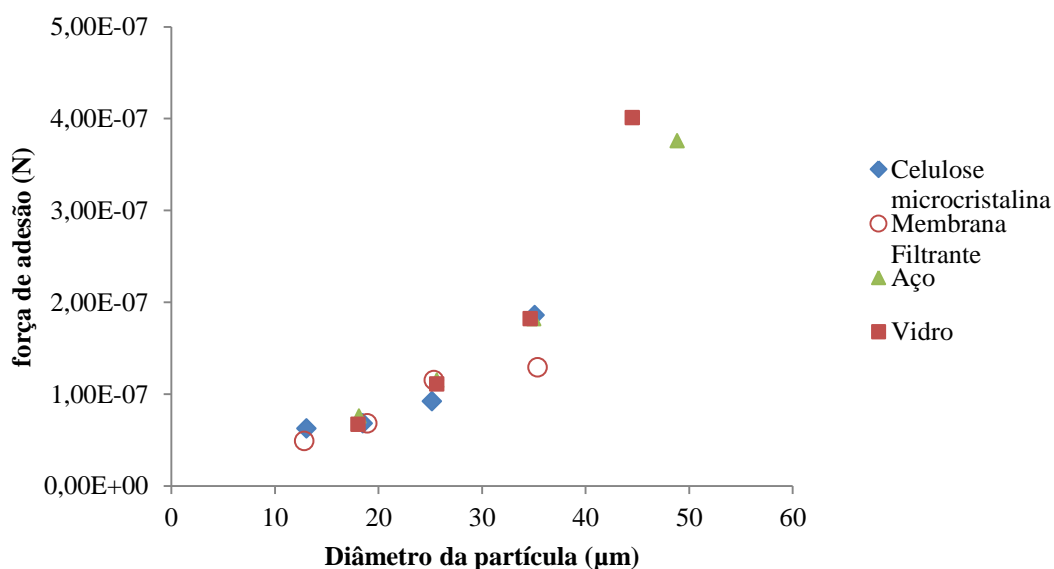
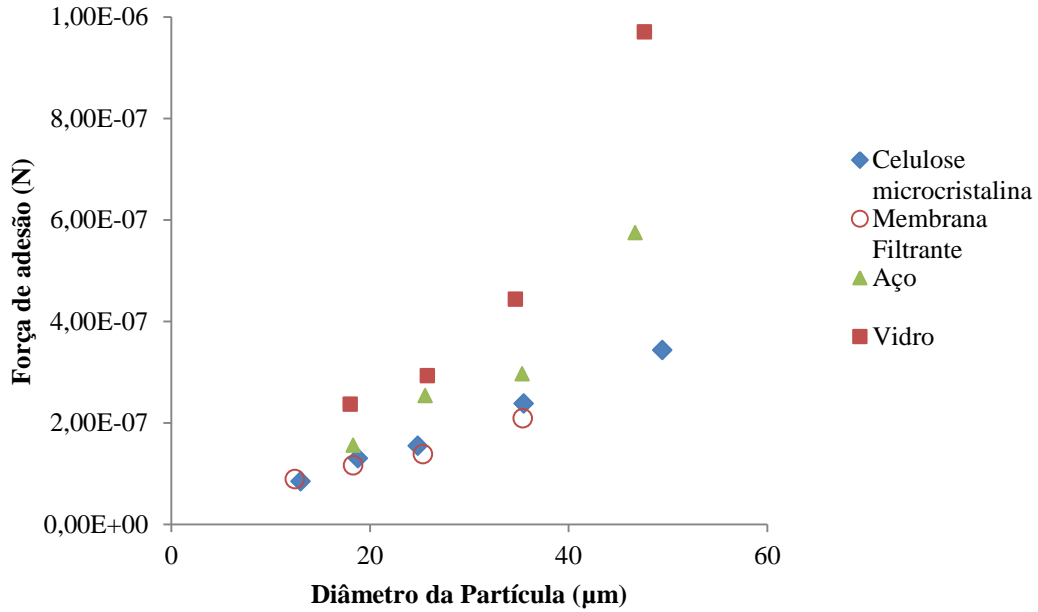
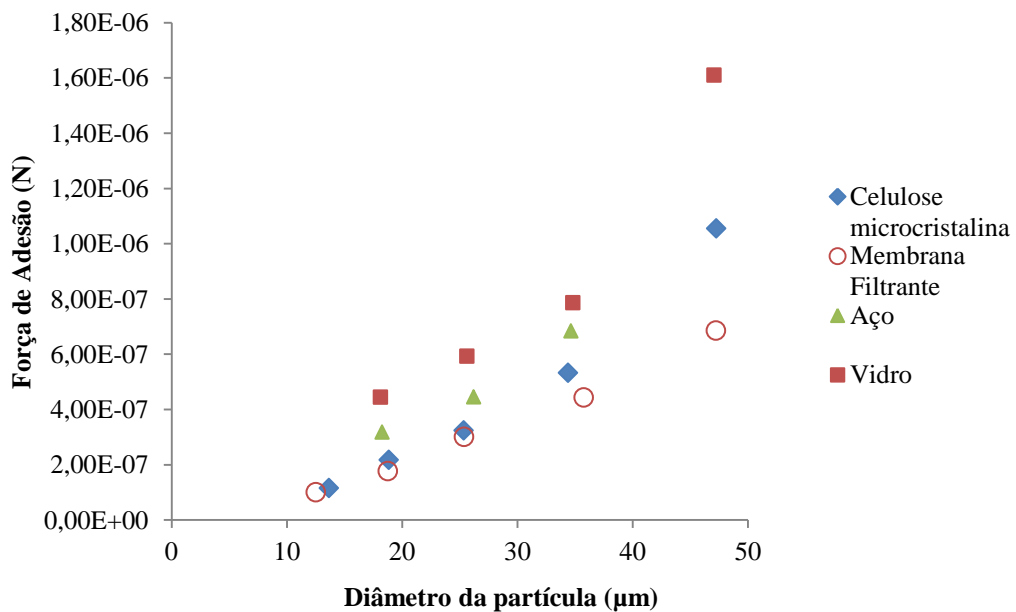


Figura 4.24 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato comprimido de celulose microcristalina e substrato de membrana filtrante, vidro e aço inoxidável após aplicação de press-on de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.25 – Força de adesão média em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para substrato comprimido de celulose microcristalina e substrato de membrana filtrante, vidro e aço inoxidável após aplicação de press-on de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se na Figura 4.23 que a diferença dos valores da força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e os quatro substratos analisados foi pouco significativa quando foi aplicada a menor força de compressão o que provocou menor deformação elástica das partículas sobre a superfície dos substratos.

Através das Figuras 4.24 e 4.25 observa-se que os valores da força de adesão das partículas de celulose microcristalina na superfície do vidro e aço inoxidável foram maiores que nos substratos de comprimido e membrana filtrante, ou seja, a força de adesão nas superfícies lisas foi maior que nas superfícies rugosas. A rugosidade presente na superfície dos materiais teve provavelmente o efeito de diminuir a força de adesão entre os corpos em contato, como esperado.

No entanto, quando se faz uma comparação entre as duas superfícies rugosas, observa-se que para uma mesma velocidade de compressão a força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e a superfície do substrato celulose microcristalina foi maior em relação à superfície da membrana filtrante. Pode-se observar também nas Figuras 4.24 e 4.25 que, para uma mesma velocidade de compressão, a força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e a superfície do substrato de vidro foi maior em relação à superfície de aço inoxidável.

Verifica-se também que entre as duas superfícies lisas, vidro e aço, a força de adesão entre partícula e substrato foi maior para a superfície de menor rugosidade enquanto que entre as duas superfícies rugosas, comprimido e membrana filtrante, a força de adesão entre partícula e substrato foi maior para a superfície de maior rugosidade. A diferença de comportamento observada na força de adesão entre partícula e superfícies lisas e rugosas pode provavelmente ser explicada pela propriedade física dos substratos como o módulo de Young.

O módulo de elasticidade ou módulo de Young ( $E$ ) é medido pela razão entre a tensão aplicada e a deformação resultante, dentro do limite elástico, em que a deformação é totalmente reversível e proporcional à tensão. O coeficiente angular na região de linearidade é denominado módulo de elasticidade. Quanto menor o módulo de Young, maior a deformação.

O comportamento mecânico das superfícies sob tensão deformação é diferente para os quatro substratos analisadas. A Tabela 4.6 apresenta valores da rugosidade e o módulo de Young para o vidro, aço inoxidável, celulose microcristalina e acetato de celulose.

Tabela 4.6 – Rugosidade (Ra) e módulo de Young (E).

Material	Rugosidade (nm)	Módulo de Young (GPa)
Vidro	1,45 <sup>[1]</sup>	75 <sup>[2]</sup>
Aço	47,86 <sup>[1]</sup>	193 <sup>[3]</sup>
Celulose microcristalina	383,6	25 <sup>[4]</sup>
Acetato de celulose	176,6	2 <sup>[5]</sup>

[1] Felicetti, 2008; [3] Libardi, 2010; [4] Eichhorn, 2001; [5] Guo, 2010

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Os substratos orgânicos, de comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose, possuem baixo valor do módulo de Young, apresentando desta forma uma maior deformação nas rugosidades dos substratos que os materiais inorgânicos, vidro e aço, durante a fase de compressão, aumentando com isso a área de contato entre partícula e substrato e conseqüentemente aumentado a força de adesão.

#### 4.4 Comparação dos resultados da força de adesão experimental com os resultados dos modelos teóricos

Após obter a força experimental entre as partículas de celulose microcristalina e as superfícies de comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose, realizou-se uma comparação com os resultados teóricos da força de adesão variando-se o método de obtenção da força de adesão. Os valores teóricos da força de adesão foram calculados usando os modelos de Johnson, Kendall e Roberts (JKR) e Derjaguin, Muller e Toporov (DMT) através das Equações 2.12 e 2.13.

$$F_{ad} = \frac{3}{4} \pi W d_p \quad (\text{JKR}) \quad (2.12)$$

$$F_{ad} = \pi W d_p \quad (\text{DMT}) \quad (2.13)$$

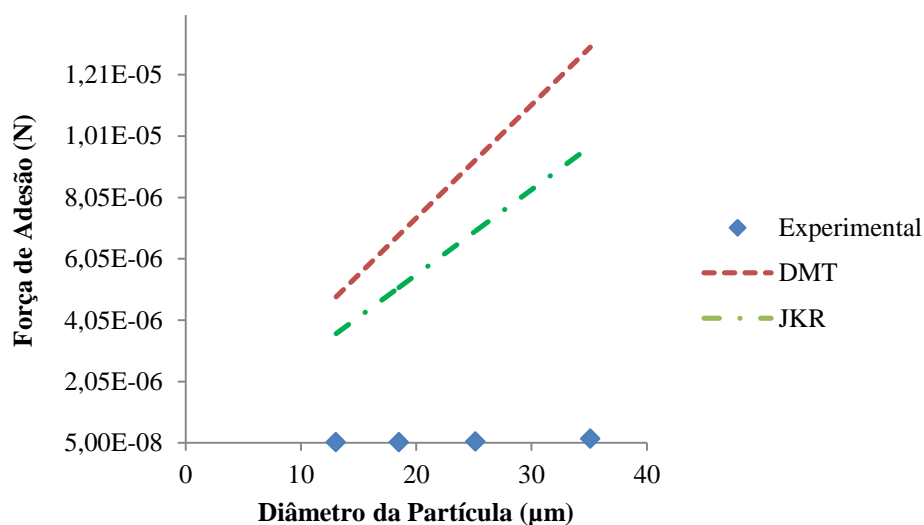


O trabalho de adesão  $W$  foi calculado utilizando os valores da tensão superficial dos componentes da adesão apresentados na Tabela 3.3 e os valores encontrados para os dois substratos foram  $0,1175 \text{ J/m}^2$  e  $0,0918 \text{ J/m}^2$  para celulose microcristalina e membrana de éster de celulose, respectivamente. O diâmetro médio, para cada faixa de diâmetro estudada, foi obtido pela média dos diâmetros das partículas fornecido pelo analisador de imagens Image-Pro Plus 7.0.

Os resultados experimentais e os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos de (DMT) e (JKR) em função do diâmetro médio da partícula, para substrato comprimido de celulose microcristalina após aplicação das forças de compressão de 1000 2000 e 5000 rpm são mostrado na Fig. 4.26 a 4.28 respectivamente.

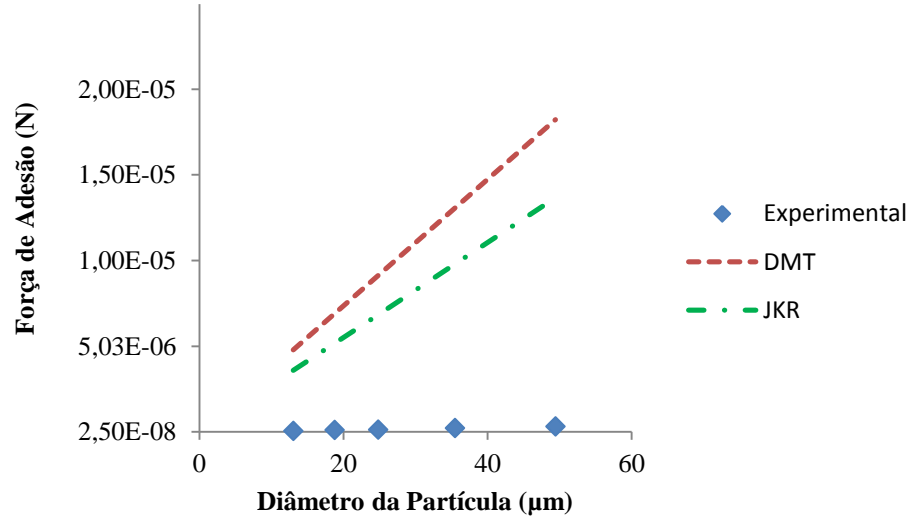
Utilizando-se a mesma metodologia com a qual foram construídos os gráficos da Figura 4.26 a 4.28, foram construídos também os gráficos das Figuras B.1, B.2 e B.3 apresentadas no Apêndice B, que apresenta os resultados experimentais e os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos de (DMT) e (JKR) em função do diâmetro médio da partícula, para substrato membrana filtrante, após aplicação das forças de compressão de 1000 2000 e 5000 rpm. Foi possível constatar, em todas as figuras do apêndice B, o mesmo comportamento observado na Figura 4.26 a 4.28.

Figura 4.26 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio das partículas para substrato de comprimido celulose microcristalina após press-on 1000 rpm.



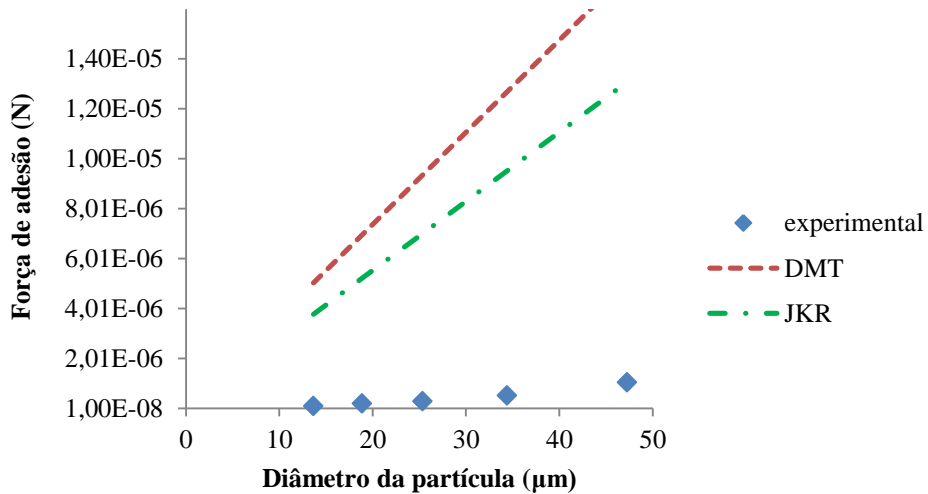
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.27 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio das partículas para substrato de comprimido celulose microcristalina após press-on 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.28 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio das partículas para substrato de comprimido celulose microcristalina após press-on 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se, nas Figuras 4.26 a 4.28, que embora o modelo de JKR tenha sido o que mais se aproximou dos resultados experimentais, os valores de força de adesão teórica foram distantes e superiores aos valores obtidos experimentalmente.

Algumas possíveis justificativas são: os modelos teóricos foram desenvolvidos considerando-se, como material particulado, partículas esféricas e completamente lisas. A celulose microcristalina é um material com baixo grau de circularidade ( $\phi = 0,68$ ) e com superfície irregular, como mostra a Figura 3.5, o que gera menos pontos de contato com o substrato e, conseqüentemente, forças de adesão menores que partículas esféricas e lisas. Além disso, para os modelos teóricos são considerados substratos completamente lisos e sem porosidade. Os substratos analisados neste trabalho possuem elevada rugosidade, como observado na Figura 3.9 ocasionando menos pontos de contato e forças de adesão também menores que o esperado teoricamente. Outra possível explicação é o fato de a força de adesão teórica ser somente influenciada pela interação das partículas com superfície por meio da tensão superficial, enquanto que a força de adesão experimental é influenciada pelo quadrado da velocidade angular de compressão. Corn (1961) constatou que a medida da força de adesão para partículas entre 10 e 100  $\mu\text{m}$  é sempre menor do que a força de adesão teórica, porque a rugosidade da superfície diminui a área de contato entre os corpos contíguos.

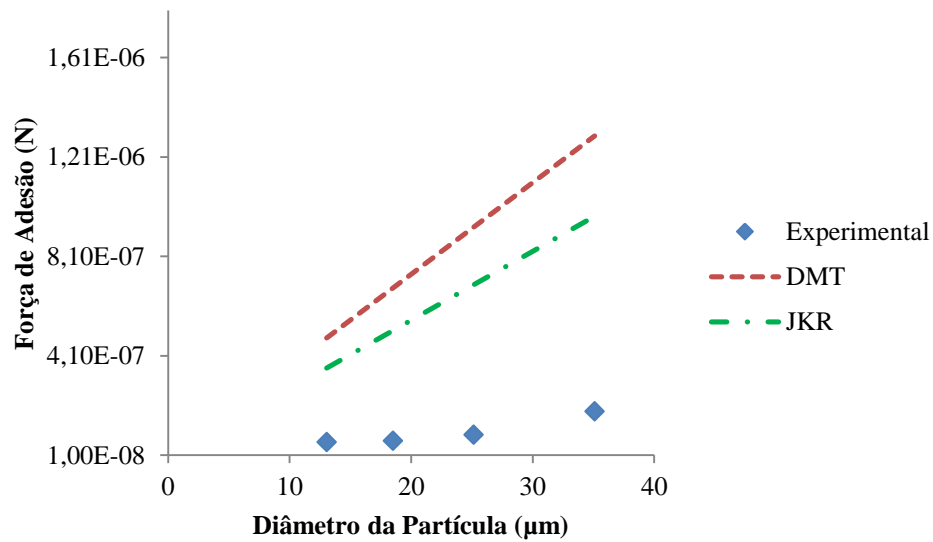
Segundo Israelachvili (1985), a tensão superficial do sólido ( $\gamma$ ) é a energia gasta para formar uma unidade de superfície do sólido e o seu valor medido no ar é muito menor do que a obtida em vácuo. Por exemplo, quando mica é clivada em alto vácuo tem-se que  $\gamma \cong 4500 \text{ mJ/m}^2$ . Quando este processo ocorre na atmosfera do laboratório, porém,  $\gamma$  é menor que  $300 \text{ mJ/m}^2$ , ou seja, ocorre uma redução de uma ordem de magnitude no valor da tensão superficial do sólido.

As Figuras 4.29 a 4.31 mostram os resultados experimentais da força de adesão entre a partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina e a força de adesão calculada usando os modelos de (DMT) e (JKR), após redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial, como função do diâmetro de partícula, após a aplicação de press-on de 1000, 2000 e 5000 rpm.

Utilizando-se a mesma metodologia com a qual foram construídos os gráficos da Figura 4.29 a 4.31, foram construídos também os gráficos das Figuras C.1 a C.3 apresentadas no Apêndice C, que apresenta os resultados experimentais e os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos de (DMT) e (JKR) em função do diâmetro médio da

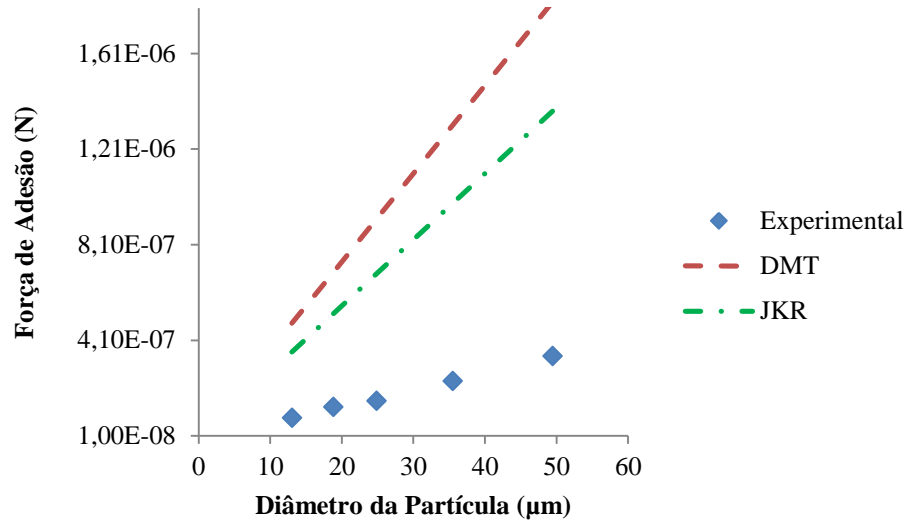
partícula, para substrato membrana filtrante, após redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial, como função do diâmetro de partícula após a aplicação de press-on de 1000, 2000 e 5000 rpm. Foi possível constatar, em todas as figuras do apêndice C, o mesmo comportamento observado na Figura 4.29 a 4.31.

Figura 4.29 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina, após press-on 1000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial



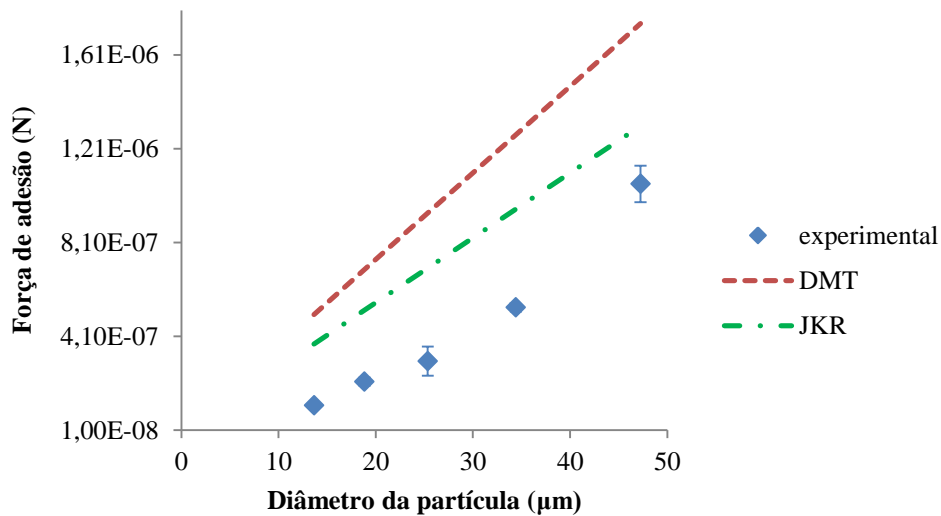
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.30 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina, após press-on 2000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.31 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e o substrato de comprimido de celulose microcristalina, após press-on 5000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Observa-se, através das Fig. 4.29 a 4.31, que os resultados da força de adesão teórica calculada usando os modelos de DMT e JKR apresentaram valores mais próximos dos resultados experimentais após a redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial, porém ainda estão distantes, pois, conforme já discutido, existem outros fatores que podem influenciar a força de adesão entre partículas e substrato.

#### 4.5 Modelo para aproximar resultados teóricos aos experimentais

De acordo com os modelos teóricos da força de adesão de Johnson, Kendall e Roberts (JKR) e Derjaguin, Muller e Toporov (DMT), a adesão de partículas e substrato depende apenas da geometria e das propriedades mecânicas da partícula e do substrato. Na realidade, a adesão partícula-substrato também é influenciada pelo tamanho da partícula, pela rugosidade da superfície, pela umidade relativa do ar e pela força de compressão “press-on”, além das propriedades físico-químicas dos materiais.

Observando-se as Equações 2.12 e 2.13 dos modelos teóricos de Johnson, Kendall e Roberts (JKR) e Derjaguin, Müller e Toporov (DMT), foi possível notar que estas seguem um padrão conforme a Equação 4.2:

$$F_{\text{adesão}} = k_t W d_p \quad (4.2)$$

sendo  $W$  o trabalho de adesão,  $d_p$  é o diâmetro da partícula aderida e  $k_t$  é uma constante teórica que depende apenas do modelo de força de adesão adotado para o cálculo da adesão teórica. Os valores de  $k_t$  dos modelos teóricos de JKR e DMT são apresentados na Tabela 4.7.

Tabela 4.7 – Os valores de  $k_t$  dos modelos JKR e DMT.

Modelos teóricos	Equação	$k_t$
DMT	$\pi W d_p$	$\pi$
JKR	$3\pi/4 W d_p$	$3\pi/4$

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

No entanto, para que o modelo teórico fosse corrigido para os valores observados experimentalmente, fez-se necessária a utilização de uma equação que envolvia uma constante de correção  $k_c$ . A Equação. 4.3 descreve a força de adesão ajustada.

$$F_{\text{adesão-ajustada}} = k_m W d_p \quad (4.3)$$

onde a constante  $k_m$  é escrita como o produto de duas outras constantes:  $k_t$ , que é a constante teórica do modelo de força de adesão; e  $k_c$ , que corrige o valor de força de adesão teórica para os valores observados experimentalmente. Deste modo, tem-se a Equação 4.4:

$$k_m = k_t \cdot k_c \quad (4.4)$$

Para obtenção dos valores de  $k_c$  foi feita, para cada diâmetro de partícula estudado em cada um dos sistemas partícula-substrato, uma divisão do valor experimental pelo valor teórico de cada modelo.

As Tabelas 4.8 e 4.9 apresentam os valores de  $k_c$  para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho e força de adesão ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR para o substrato de comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose, respectivamente.

Tabela 4.8 – Valores de kc e força de adesão ajustada, para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de comprimido de celulose microcristalina.

Velocidade compressão (rpm)	Diâmetro médio das partículas ( $\mu\text{m}$ )	Força de Adesão média experimen tal (N)	Modelo DMT		Modelo JKR	
			kc	Fa	kc	Fa
1000	13,1	6,26E-08	0,013	5,68E-08	0,017	5,78E-08
	18,5	6,80E-08	0,010	8,05E-08	0,013	8,19E-08
	25,2	9,21E-08	0,010	1,09E-07	0,013	1,11E-07
	35,1	1,86E-07	0,014	1,53E-07	0,019	1,55E-07
	-	-	-	-	-	-
2000	13,1	8,49E-08	0,018	7,17E-08	0,023	7,19E-08
	18,8	1,30E-07	0,019	1,03E-07	0,025	1,04E-07
	24,9	1,55E-07	0,017	1,37E-07	0,022	1,37E-07
	35,5	2,38E-07	0,018	1,95E-07	0,024	1,95E-07
	49,5	3,44E-07	0,019	2,72E-07	0,025	2,72E-07
5000	13,7	1,16E-07	0,023	1,90E-07	0,031	1,90E-07
	18,9	2,17E-07	0,031	2,63E-07	0,041	2,63E-07
	25,6	3,04E-07	0,032	3,54E-07	0,043	3,54E-07
	34,4	5,33E-07	0,042	4,80E-07	0,056	4,80E-07
	47,3	1,06E-06	0,061	6,59E-07	0,081	6,59E-07

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)



Tabela 4.9 – Valores de  $k_c$  e força de adesão ajustada, para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de membrana filtrante éster celulose.

Velocidade compressão (rpm)	Diâmetro médio das partículas ( $\mu\text{m}$ )	Força de Adesão média experimental (N)	Modelo DMT		Modelo JKR	
			$k_c$	Fa	$k_c$	Fa
1000	12,4	4,41E-08	0,012	4,68E-08	0,016	4,69E-08
	18,9	6,01E-08	0,011	7,12E-08	0,015	7,13E-08
	24,8	1,13E-07	0,016	9,36E-08	0,021	9,38E-08
	35,5	1,36E-07	0,013	1,34E-07	0,018	1,34E-07
	-	-	-	-	-	-
2000	12,5	8,91E-08	0,025	8,12E-08	0,033	7,76E-08
	18,3	1,17E-07	0,022	1,19E-07	0,029	1,14E-07
	25,3	1,39E-07	0,019	1,65E-07	0,025	1,58E-07
	35,4	2,09E-07	0,020	2,31E-07	0,027	2,20E-07
	-	-	-	-	-	-
5000	12,5	1,01E-07	0,016	1,41E-07	0,037	1,41E-07
	18,8	1,77E-07	0,033	2,12E-07	0,044	2,11E-07
	25,4	3,01E-07	0,041	2,86E-07	0,055	2,86E-07
	35,8	4,44E-07	0,043	4,03E-07	0,057	4,03E-07
	47,2	6,86E-07	0,050	5,32E-07	0,067	5,32E-07

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Através das Tabelas 4.8 e 4.9, observa-se que, para as velocidades angulares de compressões de 1000 e 2000 rpm, o valor da constante  $k_c$  não variou consideravelmente com o diâmetro das partículas apresentando praticamente o mesmo valor. No entanto, para a compressão de 5000 rpm, o valor da constante  $k_c$  variou linearmente com o diâmetro da partícula para os dois substratos utilizados neste estudo, comprimido e membrana filtrante. Como a celulose microcristalina e a membrana filtrante apresentam baixo valor do módulo de Young, conforme mostrado na Tabela 4.6, ou seja, são bastante elásticas, tanto as partículas quanto os substratos sofreram deformação após a aplicação da força de compressão. A aplicação da maior força de compressão de 5000 rpm causou a maior deformação na partícula

e nas superfícies do comprimido e da membrana filtrante de éster celulose com influência direta no tamanho das partículas.

Foram calculados também os valores de  $k_c$  para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste estudo. A força de adesão foi ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, usando o modelo de DMT e JKR para o substrato de vidro e aço inoxidável, utilizando a mesma metodologia para o cálculo de  $k_c$  empregada nos substratos de comprimido e da membrana filtrante.

Para a determinação do trabalho de adesão  $W_A$  entre as partículas de celulose microcristalina e os substratos de vidro e aço, calculado através das Equações 2.14 e 2.15, foi necessária uma busca na literatura dos valores de tensão superficial ( $\gamma$ ) do vidro e aço inoxidável. A Tabela 4.10 apresenta os valores da tensão superficial dos componentes de adesão do vidro e aço inoxidável.

Tabela 4.10 – Tensão Superficial dos componentes da adesão.

Material	$\gamma$ (mJ/m <sup>2</sup> )
Vidro <sup>[1]</sup>	57,7
Aço <sup>[2]</sup>	39

[1] Felicetti (2008); [2] Podczeczek (1999)

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

O trabalho de adesão  $W$  presente nas equações dos modelos de JKR e DMT foi calculado utilizando-se os valores da tensão superficial dos componentes da adesão apresentados na Tabela 4.10. Os valores encontrados para os dois substratos de vidro e aço inoxidável foram 0,1154 J/m<sup>2</sup> e 0,078 J/m<sup>2</sup>, respectivamente. O diâmetro médio, para cada faixa de diâmetro estudada, foi obtido pela média dos diâmetros das partículas fornecido pelo analisador de imagens Image-Pro Plus 7.0.

As Tabelas 4.11 e 4.12 apresentam os valores de  $k_c$  para todas as faixas de diâmetros utilizadas neste trabalho e a força de adesão ajustada para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR para o substrato de vidro e aço inoxidável, respectivamente.

Tabela 4.11 – Valores de  $k_c$  e força de adesão ajustada, para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de vidro.

Velocidade compressão (rpm)	Diâmetro médio das partículas ( $\mu\text{m}$ )	Força de Adesão média experimen tal (N)	Modelo DMT		Modelo JKR	
			$k_c$	Fa	$k_c$	Fa
1000	18,01	6,70E-08	0,010	1,01E-07	0,014	9,98E-08
	25,63	1,11E-07	0,012	1,44E-07	0,016	1,46E-07
	34,65	1,82E-07	0,015	1,95E-07	0,019	1,98E-07
	44,52	4,01E-07	0,025	2,50E-07	0,033	2,54E-07
2000	18,04	2,37E-07	0,036	1,73E-07	0,049	1,73E-07
	25,8	2,93E-07	0,032	2,47E-07	0,042	2,52E-07
	34,67	4,44E-07	0,036	3,32E-07	0,047	3,39E-07
	47,65	9,71E-07	0,057	4,56E-07	0,075	4,66E-07
5000	18,13	4,45E-07	0,068	4,76E-07	0,091	4,78E-07
	25,63	5,93E-07	0,064	6,73E-07	0,086	6,76E-07
	34,83	7,86E-07	0,063	9,15E-07	0,084	9,18E-07
	47,07	1,61E-06	0,095	1,24E-06	0,127	1,24E-06

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Tabela 4.12 – Valores de  $k_c$  e força de adesão ajustada, para as velocidades angulares de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, utilizando o modelo de DMT e JKR, para o substrato de aço.

Velocidade compressão (rpm)	Diâmetro médio das partículas ( $\mu\text{m}$ )	Força de Adesão média experimen tal (N)	Modelo DMT		Modelo JKR	
			$k_c$	Fa	$k_c$	Fa
1000	18,13	7,60E-08	0,017	9,59E-08	0,022	9,59E-08
	25,64	1,15E-07	0,018	1,36E-07	0,024	1,36E-07
	34,98	1,82E-07	0,021	1,85E-07	0,028	1,85E-07
	48,85	3,76E-07	0,031	2,58E-07	0,041	2,58E-07
2000	18,33	1,56E-07	0,034	1,76E-07	0,045	1,76E-07
	25,57	2,54E-07	0,040	2,45E-07	0,053	2,45E-07
	35,33	2,97E-07	0,034	3,39E-07	0,045	3,39E-07
	46,72	5,75E-07	0,049	4,49E-07	0,066	4,48E-07
5000	18,28	1,68E-07	0,037	2,16E-07	0,049	2,16E-07
	26,21	3,18E-07	0,049	3,09E-07	0,065	3,10E-07
	34,66	4,46E-07	0,051	4,09E-07	0,069	4,09E-07
	48,72	6,84E-07	0,056	5,75E-07	0,075	5,75E-07

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Através das Tabelas 4.11 e 4.12, nota-se, para as três velocidades angulares de compressões de 1000, 2000 e 5000 rpm, que o valor da constante  $k_c$  variou linearmente com o diâmetro da partícula para os substrato de vidro e aço inoxidável. Esses resultados mostram que possivelmente houve deformação das partículas de celulose microcristalina nas superfícies do aço e vidro com influência direta no tamanho das partículas. Isso pode ser justificado devido às características das propriedades dos substratos e das partículas de celulose microcristalina. Como a celulose microcristalina apresenta baixo valor do módulo de Young e o vidro e aço valores mais elevados, somente as partículas de celulose microcristalina sofreram deformação após a aplicação da força de compressão.

O valor  $k_c$  foi obtido como uma média aritmética dos valores de todas as divisões, para cada força de compressão de cada modelo teórico. As Tabelas 4.13 e 4.14 apresentam os valores de  $k_c$  obtidos para cada substrato: orgânicos, comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante de éster de celulose, e inorgânicos, vidro e aço.

Tabela 4.13 – Os valores de  $k_c$  para comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose.

Compressão (rpm)	$k_c$			
	Modelo DMT		Modelo JKR	
	Comprimido	Membrana	Comprimido	Membrana
1000	0,012	0,013	0,016	0,018
2000	0,015	0,022	0,020	0,029
5000	0,038	0,030	0,050	0,052

Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Tabela 4.14 – Os valores de  $k_c$  para cada substrato de vidro e aço.

Compressão (rpm)	$k_c$			
	Modelo DMT		Modelo JKR	
	Vidro	Aço	Vidro	Aço
1000	0,015	0,022	0,021	0,029
2000	0,026	0,039	0,035	0,052
5000	0,073	0,048	0,097	0,064

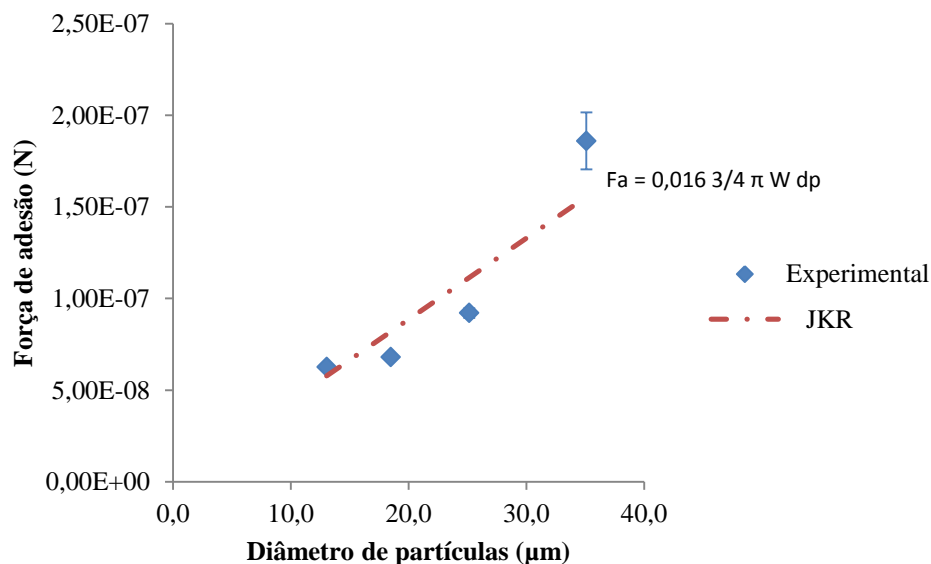
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

As Figuras 4.32 a 4.37 apresentam os gráficos da força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para o substrato comprimido e membrana filtrante.

As Figuras 4.32 a 4.37 mostram também as correlações lineares obtidas, utilizando os valores de  $k_c$  apresentados na Tabela 4.13, para as três velocidades de compressão 1000, 2000 e 5000 rpm, onde  $F_{ad}$  e  $d_p$  representam respectivamente a força de adesão média ajustada (em Newton) e o diâmetro da partícula (em metro).

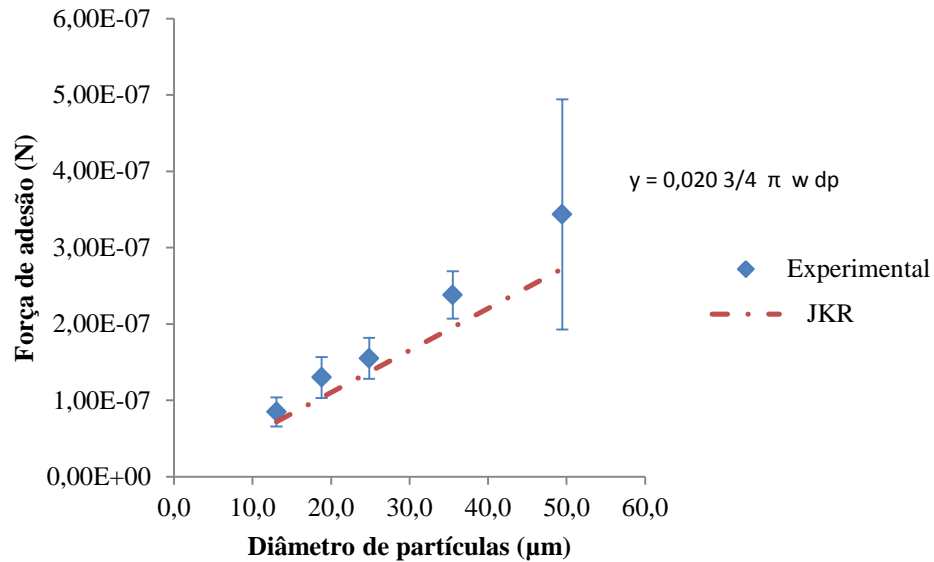
Utilizando-se a mesma metodologia com a qual foram construídos os gráficos da Figura 4.32 a 4.37 foram construídos também os gráficos das Figuras D.1 a D.6 apresentadas no Apêndice D, que apresentam os gráficos da força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para o substrato de vidro e aço inoxidável, após aplicação das forças de compressão de 1000 2000 e 5000 rpm. Foi possível constatar, em todas as figuras do apêndice D, o mesmo comportamento observado nas Figuras 4.32 a 4.37.

Figura 4. 32 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato comprimido.



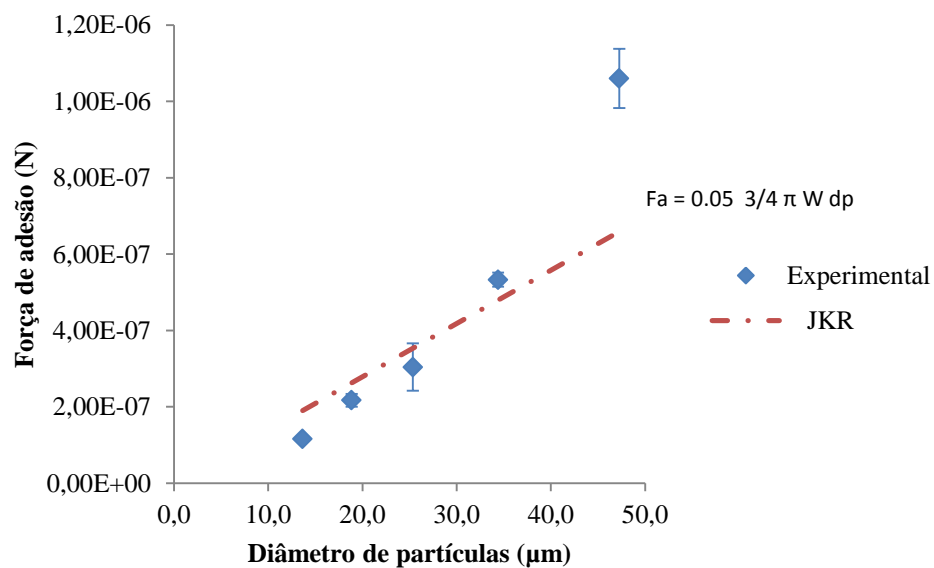
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.33 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para o substrato comprimido.



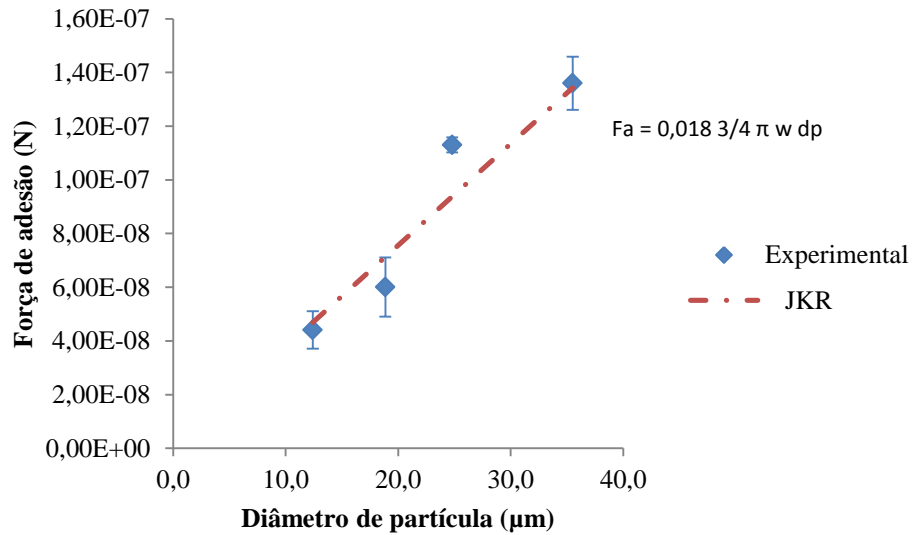
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4.34 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para o substrato comprimido.



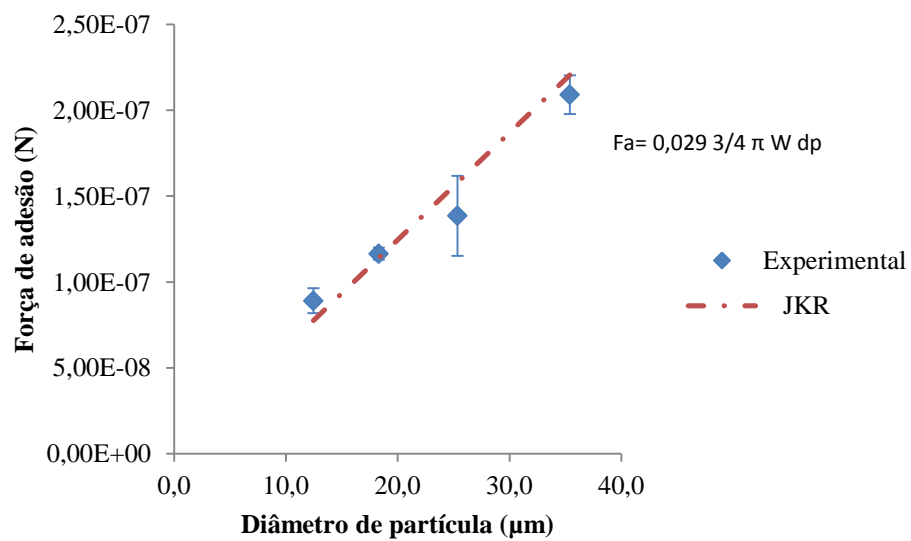
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura 4. 35 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato de membrana filtrante.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

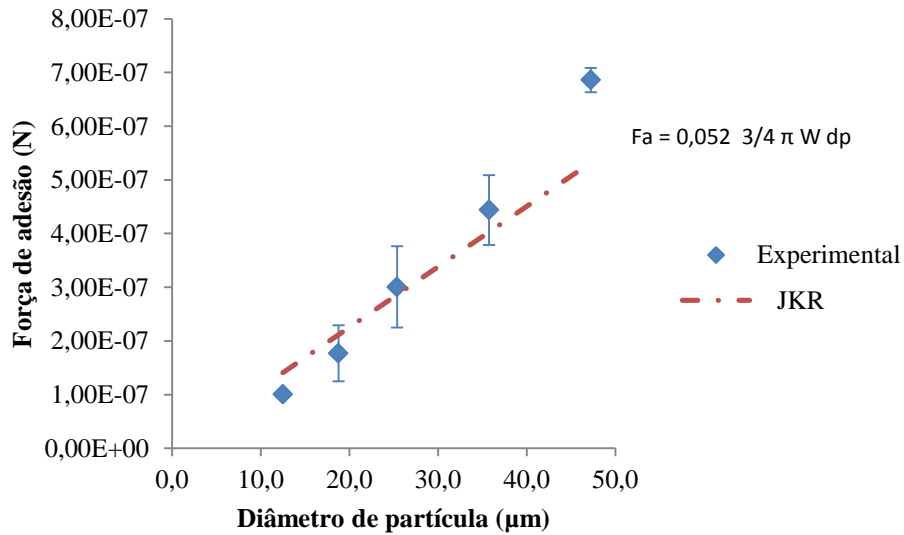
Figura 4. 36 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para substrato de membrana filtrante.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)



Figura 4. 37 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para substrato de membrana filtrante.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Verifica-se nas Figuras 4.32 a 4.37, que, através do modelo descrito pela Equação (4.3), foi possível obter constantes de correção  $k_c$  que aproximam a força de adesão teórica para a força de adesão real observada experimentalmente, sendo os valores de  $k_c$  dependentes da partícula, das propriedades físicas dos substratos e da força de compressão aplicada no sistema em que se está realizando o estudo da força de adesão.

---

## 5. CONCLUSÕES

Utilizou-se a técnica centrífuga para a investigação da força de adesão entre partículas de celulose microcristalina e as superfícies rugosas, de comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante de éster celulose utilizando a técnica centrífuga para diferentes velocidades de compressão e desprendimento. A partir dos resultados experimentais, as principais conclusões desse trabalho foram:

- A força de adesão entre partícula de celulose microcristalina e as superfície de celulose microcristalina e membrana filtrante aumentou linearmente com o diâmetro médio da partícula;
- A aplicação da velocidade angular de compressão possui influência direta na força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e o substrato comprimido de celulose microcristalina e a membrana filtrante;
- Para o mesmo diâmetro da partícula, a força de adesão entre as partículas de celulose microcristalina e o comprimido de celulose microcristalina foi maior do que a força de adesão da mesma partícula e a superfície membrana filtrante éster celulose;
- Os substratos de comprimido de celulose microcristalina e membrana filtrante éster celulose possuem baixo valor do módulo de Young, apresentando desta forma uma deformação nas rugosidades dos substratos durante a fase de compressão que pode ter causado deformação plástica nas asperezas e ter aumentado a área de contato entre partícula e substrato, e conseqüentemente a força de adesão;
- em relação aos métodos teóricos de obtenção da força de adesão, o modelo de Johnson, Kendall and Roberts (JKR) foi o que mais se aproximou dos resultados experimentais;

- Os valores de força de adesão teórica calculados usando os modelos de (DMT) e (JKR) foram divergentes e superiores aos valores obtidos experimentalmente. Algumas possíveis justificativas são: os modelos teóricos foram desenvolvidos considerando-se, como material particulado, partículas esféricas e completamente lisas. No entanto, a celulose microcristalina é um material com baixo grau de circularidade ( $\phi = 0,68$ ) e com superfície irregular, que gera menos pontos de contato com o substrato e, conseqüentemente, forças de adesão menores que partículas esféricas e lisas. Além disso, para os modelos teóricos foram considerados substratos completamente lisos e sem rugosidade. Os substratos analisados neste trabalho possuem elevada rugosidade ocasionando menos pontos de contato e forças de adesão também menores que o esperado teoricamente;
- Foi possível obter constantes de correção ( $k_c$ ) que aproximam a força de adesão teórica para a força de adesão real, determinada experimentalmente, sendo que os valores de  $k_c$  dependerão da partícula, do substrato e da compressão aplicada no sistema em que se está realizando o estudo da força de adesão.

---

## 5. SUGESTÕES DE TRABALHOS FUTUROS

Para continuidade desse estudo são dadas as seguintes sugestões:

- Estudar o efeito da forma da partícula sobre a força de adesão utilizando material pulverulento de forma esférica para comparar os resultados com as partículas de celulose microcristalina obtidos nesse trabalho.
- Utilizar outro material pulverulento nos testes experimentais com a técnica centrífuga para determinar a força centrífuga em partículas e substrato de membrana filtrante de diferentes porosidades.
- Investigar a influência da umidade relativa do ar para avaliar o efeito da força de capilaridade na força de adesão entre partícula e substrato.
- Estudar a força de adesão entre outros pós farmacêuticos e a superfície compactada de celulose microcristalina utilizada nesse trabalho.
- Utilizar uma centrífuga com velocidade superior a 14000 rpm para avaliar o comportamento da força de adesão entre partícula e substrato utilizando velocidade de compressão maiores que 5000 rpm.

---

## 5. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AGUIAR, M. L.; Coury, J. R. Air filtration in fabric filters: cake-cloth adhesion force. *Fluif/Part. Sep. Journal*, v.5, n.4, p.193-198, 1992.

AHRENS, F.; PATTERSON, T.; MUELLER, S.; HOJJATIE, B. Investigation of paper dryer picking, web transfer and quality issues using a new web adhesion and drying simulator. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, v.22, n. 2, p. 217 – 225, 2005.

ALLEN, T. Particle size measurement. 4<sup>a</sup> ed. London: Chapman and Hall. 1990.

AZEVEDO, S. G. R. Estudo da influência do formato das partículas na operação de filtração de gases. Dissertação de Mestrado. Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2009.

BANDA, S. G. Desenvolvimento de uma metodologia experimental, para determinar a força de adesão entre partículas e uma superfície plana, utilizando a técnica centrífuga. Dissertação de Mestrado. Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2002.

BÖEHME, G.; KRUPP, H.; RABENHORST, H.; SANDSTEDE G. Adhesion measurements involving small particles. *Trans. Inst. Chem. Eng.* v.40, p.252 -259, 1962.

BOOTH, S. W.; NEWTON, J.M. Experimental investigation of adhesion between powders and surfaces. *Journal of Pharmaceutical and Pharmacology.* v.39, p.679 - 684, 1987.

BOWLING, R. A. A theoretical review of particle adhesion. In: Mittal KL, editor. *Particles on surfaces*. Vol. 1. New York: Plenum Press. p. 129-42, 1988.

BRADLEY, R. S The cohesive force between solid surfaces and the surface energy of solids, *Philos. Mag.* v. 13, p. 853 – 862, 1932.

BRANDRUP, J.; IMMERGUT, H.; *Polymer Handbook*, 3 ed. New York: John Wiley, p. VI/411 – VI/424, 1989.

BUSNAINA, A.; TAYLOR, A.; J.; KASHKOUSH, I. Measurements of adhesion and a removal forces of submicron particles on silicon surfaces. *Journal of Adhesion Science and Technology*, v. 7, n. 5, p. 441 – 455, 1993.

CHEONG, Y. S.; MANGWANDI, C.; FU, J.; ADAMS, M. J.; HOUNSLOWA, M. J.; SALMANA, A. D. A Mechanistic description of granule deformation and breakage. *Handbook of Powder Technology*, Edition 12 Chapter 26, Elsevier, p. 1055-1120, 2007.

CORN, M. The adhesion of solid particles to solid surfaces, I. A review. *J. Air Pollution Control Assoc.*, v.11, p. 523 - 528, 1961.

CROMPTON, C. Particle Shape: An important parameter in pharmaceutical manufacturing. pharmaceutical manufacturing and packing. Sourcer Spring.Samedan Ltd, 2005

DAHNEKE, B. Influence of flattening on adhesion of particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, v.40, n.1, p.1 1972.

DERJAGUIN, B. V.; MULLER V. M.; TOPOROV Y.P. Effect of contact deformations on the adhesion of particles. *Journal of Colloid Interface Science*, v.53, p.314-324, 1975.

DING, W. Nicro/Nano-particle manipulation and adhesion studies. *Journal of Adhesion Science and Technology* 22, 457–480, 2008.

DREU, R.; SIRCA, J.; PINTYE, K.; BURJAN, T.; PLANINSEK, O.; SRCIC, S.; Physicochemical properties of granulating liquids and their influence on microcrystalline cellulose pellets obtained by extrusion-spheronisation technology. *International Journal of Pharmaceutics* 291, 99–111, 2005.

EICHHOR, S.J.; YOUNG, R. J. The Young's modulus of a microcrystalline cellulose. *Cellulose* v. 8, p. 197-207, 2001.

FAUSTINO, P. B. Determinação experimental da força de adesão entre partículas e meios filtrantes. Dissertação de Mestrado. Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2010.

FELICETTI, M. A. Investigação da influência do tamanho das partículas de materiais pulverulentos sobre a força de adesão em diferentes substratos aplicando a técnica centrífuga. Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2008.

GADY, B.; REIFENBERGER, R.; RIMAI, D. S. Contact electrification studies using atomic force microscope techniques. *Appl. Phys.*, v. 84, p. 319, 1998a.

GADY, B.; SCHLEEF, D.; REIFENBERGER, R.; RIMAI, D. S. The Interaction between micrometer-size particles and flat substrates: a quantitative study of jump-to-contact. *J. Adhesion*, v. 67, p. 291, 1998b.

GUO, J.; BARBARI, T. A. A dual mode interpretation of the kinetics of penetrant-induced swelling and deswelling in a glassy polymer. *Polymer* 51, 2010.

HINDS, W., C. Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles. A Wiley-Interscience publication. 2<sup>nd</sup> ed., p. 141 - 144, 1998.

HUANG, Y.; BARRINGER, S. A. Adhesion of food powders with nonelectrostatic and electrostatic coating. *Journal of Food Process Engineering*, 2011.

ISRAELACHVILI, J.N. Intermolecular and Surface Forces, Academic Press, New York, 1995.

JOHNSON, K.L.; KENDAL, L K.; ROBERTS, A.D. Surface energy and the contact of elastic solids. *Proc. R. Soc. A*, v. 324, p. 301 - 313, 1971.

KRUPP, H. Particle adhesion theory and experiment. *Adv. Coll. Interface Science*, v.1, n.2, p. 111 - 239, 1967.

KUMAR, A.; STAEDLER, T.; JIANG, X. A role of relative size of asperities and adhering particle on the adhesion force. *Jornal of colloid and interface Science* 409, 211-218, 2013.

LAM, K. K.; NEWTON, J.M. Influence of particle size on the adhesion behaviour of powders, after application of an initial press-on force. *Powder Technology*, v.73, p.117 - 125, 1992.

LI, Q.; RUDOLPH, V.; PEUKERT, W. London-van der Waals adhesiveness of rough particles. *Powder Technology*, v. 161, p. 248 – 255, 2006.

LIBARDI, R, Cartas de controle de média para utilizar em uma máquina de ensaios de tração metrologia e instrumentação, 2010.

LIMA, T. S. Investigação da força de adesão entre micro-partículas e substratos rugosos. Relatório Final Iniciação Científica. Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2011.

MIZES, H.; OTT, M.; EKLUND, E.; HAYS, D. Small particle adhesion: measurement and control. *Colloids and Surfaces*, v.165, p. 11 – 23, 2000.

NGUYEN, T. T.; RAMBANAPASI, C.; BOER, A. H.; FRIJLINK, H. W.; VEM, P. M. A centrifuge method to measure particle cohesion forces to substrate surfaces: the use of a force distribution concept for data interpretation. *International Journal of pharmaceutics*. 393, 88-95, 2010.

O'BRIEN, W. J.; HERMANN, J.J. Strength of liquid bridges between dissimilar materials. *Journal of Adhesion*, v. 5, p. 91 - 103, 1973.

OLÁH, A.; VANCISO, G. J. Characterization of adhesion at solid surfaces: Development of an adhesion-testing device. *European Polymer Journal*. p. 2803-2823, 2005.

OTSUKA, A.; IIDA, K.; DANJO, K.; SUNADA, H. Measurement of the adhesive force between particles of powdered materials and a glass substrate by means of the impact separation method. *Chem. Pharm. Bull.*, 36, p. 741, 1988.

PACKHAM, D. E. *Handbook of Adhesion*, Second Edition. John Wiley & Sons. 2005

PAPINI, C. J. Estudo Comparativo de métodos de determinação do tamanho de partículas. Dissertação de mestrado. Instituto de pesquisas energéticas e nucleares, 2003.

PODCZECK, F. Investigations into the reduction of powder adhesion to stainless steel surfaces by surface modification to aid capsule filling. *International Journal of Pharmaceutics*, v. 178, p. 93 - 100, 1999.

PODCZECK, F.; NEWTON, J. M. Development of an ultracentrifuge technique to determine the adhesion and friction properties between particles and surfaces. *J. Pharmaceutical sciences*, v.84, n.9, p. 1067 - 1071, 1995.

PODCZECK, F.; NEWTON, J.M.; JAMES, M.B. The influence of constant and changing relative humidity of the air on the autoadhesion force between pharmaceutical powder particles. *International Journal of Pharm.*, v. 145, p. 221 - 229, 1996.



RAWLE, A. Basic principles of particle size AHMED, M. M. Effect of comminution on particle shape and surface roughness and their relation to flotation process. *International Journal Mineral Processing*, v.94, p.180-191, 2010.

RIMAI, D.S.; QUESNEL, D.J.; BUSNAINA, A.A. The adhesion of dry particles in the nanometer to micrometer-size range. *Colloids and Surfaces*, v. 165, p. 3 – 10, 2000.

RUMPF, H. Particle Adhesion. In: Sastra, K.V.S. (Ed.) *agglomeration 77*, American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers, New York, p. 97 -129, 1977.

SALAZAR-BANDA, G.R.; FELICETTI, M.A.; GONÇALVES, J.A.S.; COURY, J.R.; AGUIAR, M.L. Determination of the adhesion force between particles and a flat surface, using the centrifuge technique. *Powder Technol.* 173, 107–117, 2007.

SHIMADA, Y.; YONEZAWA, Y.; SUNADA, H.; NONAKA, R.; KATOU,K.; MORISHITA, H. Development of an apparatus for measuring adhesive force between fine particles. *KONA*, n. 20, p. 223 - 230, 2002.

STEWART, P.J. Particle interaction in pharmaceutical systems. *Pharm. Int.*, v.7, p. 146 - 149, 1986.

TABOR, D. Surface forces and surface interactions. *J Colloid Interf Sci* 58(1):2–13. 1977.

TAKEUCHI, M. Adhesion forces of charged particles. *Chem. Eng. Sci.* 61(7): 2279-89, 2006.

TYKHONIUKA, R.; TOMASA, J.; LUDING, S.; KAPPLC, M.; HEIMC, L.; BUTTC, H. Ultrafine cohesive powders: From interparticle contacts to continuum Behaviour, *Chemical Engineering Science* 62, 2843 – 2864, (2007).

ULUSOY, U. Application of ANOVA to image analysis results of talc particles produced by different milling. *Powder Technology*.v. 188, p.133-138, 2008.

VISSER, J. Particle adhesion and removal: a review. *Particulate science and technology*, v.13, p. 169 - 196, 1995.

XIE, H.Y. The role of Interparticle forces in the fluidization of fine particles. *Powder Technology*, v.94, p.99 – 108, 1997.

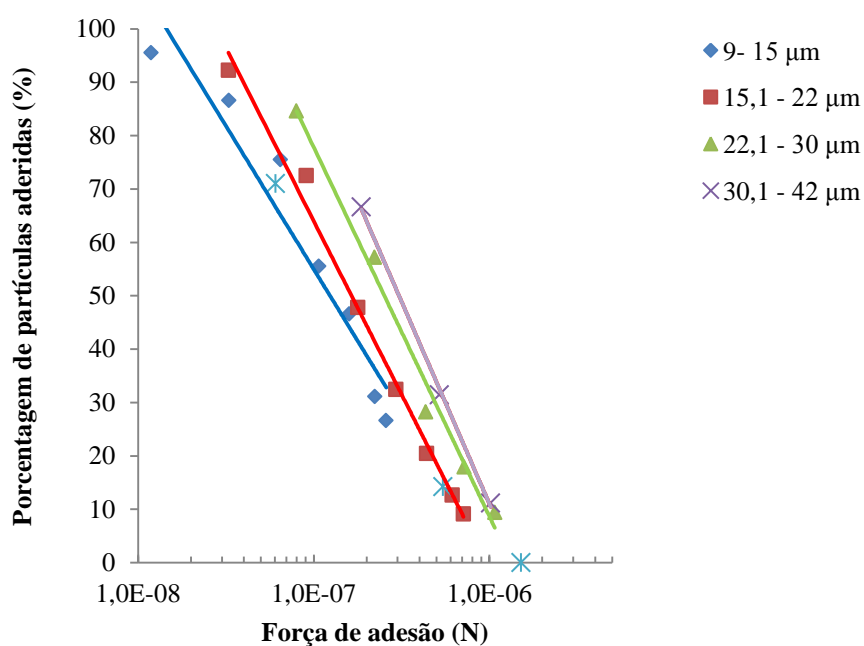
ZIMON A. D. Adhesion of Dust and Powders. Consultants Bureau, New York, p.109 -125, 1982.

## **Apêndice A**

**Gráficos de réplicas experimentais para confirmação dos resultados de porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície dos substratos em função da força de adesão,**

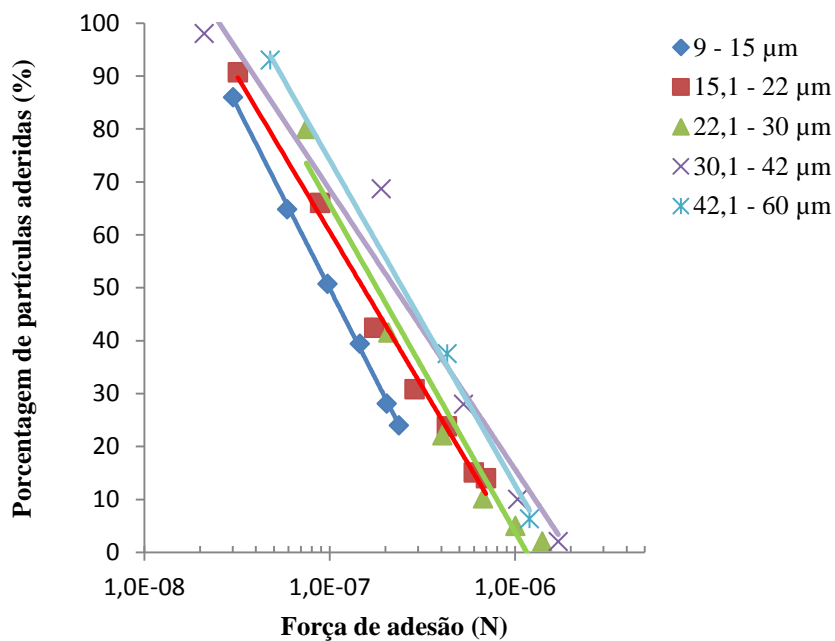
Para a comprovação dos resultados encontrados da porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina e da membrana filtrante de éster de celulose, em função da força de adesão para as velocidades de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm, foram feitas réplicas experimentais cujos gráficos estão representados pelas Figuras A.1 a A.3 e A.4 a A.6.

Figura A.1 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.



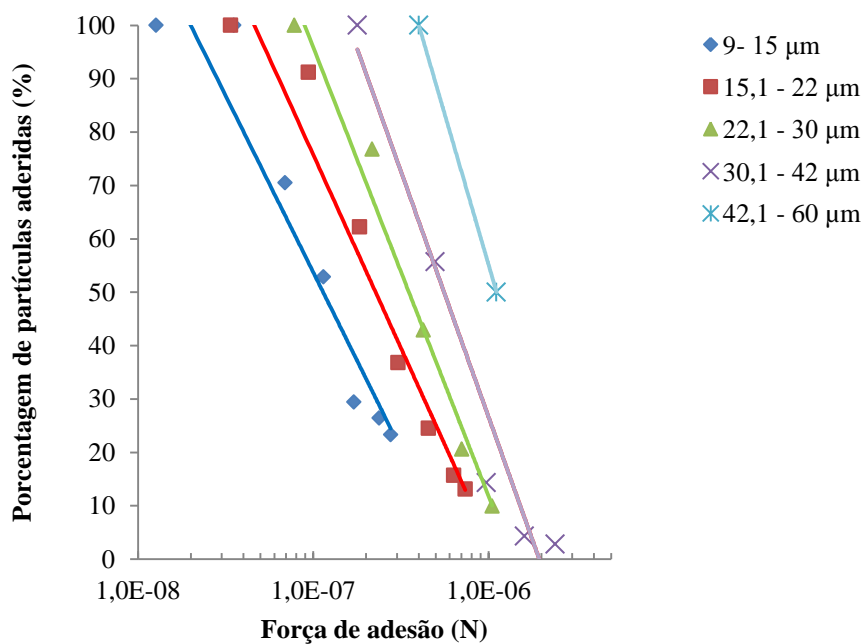
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura A.2 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.



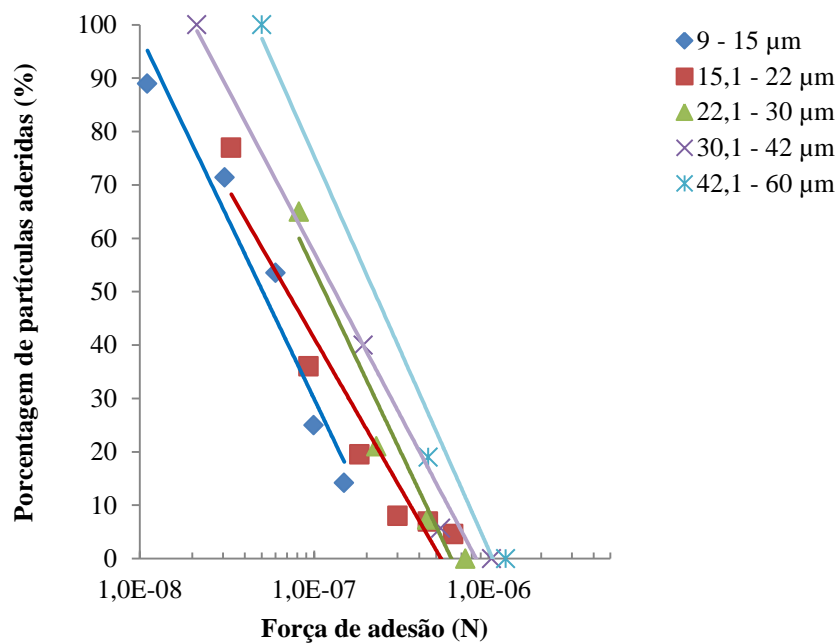
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura A.3 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície do comprimido de celulose microcristalina em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.



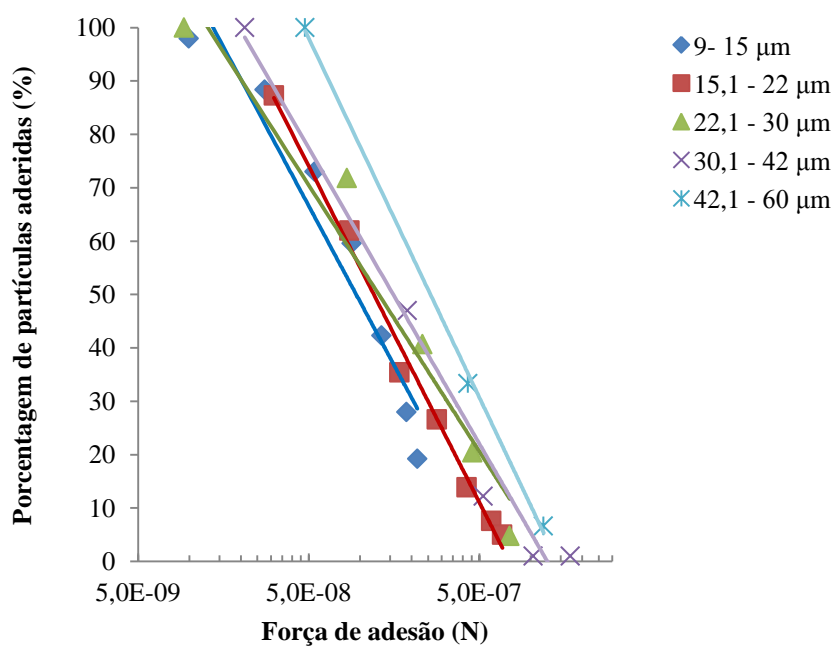
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura A.4 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície da membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 1000 rpm.



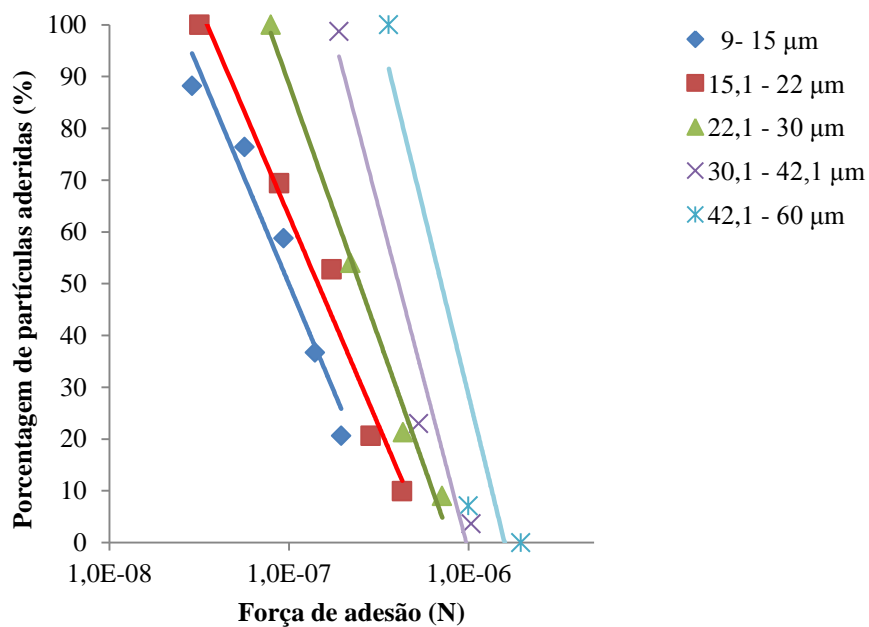
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura A.5 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície da membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura A.6 – Porcentagem de partículas de celulose microcristalina aderidas na superfície da membrana filtrante de éster celulose em função da força de adesão após a aplicação da velocidade de compressão de 5000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

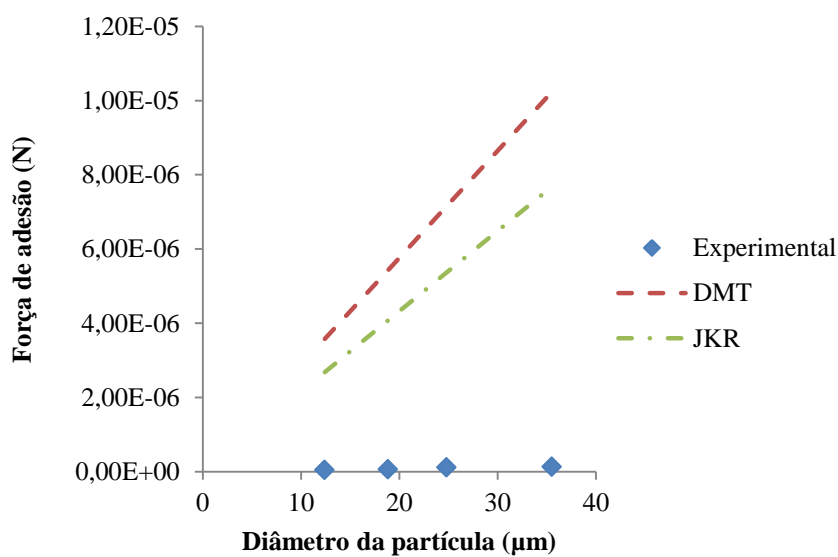
## **Apêndice B**

**Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante**



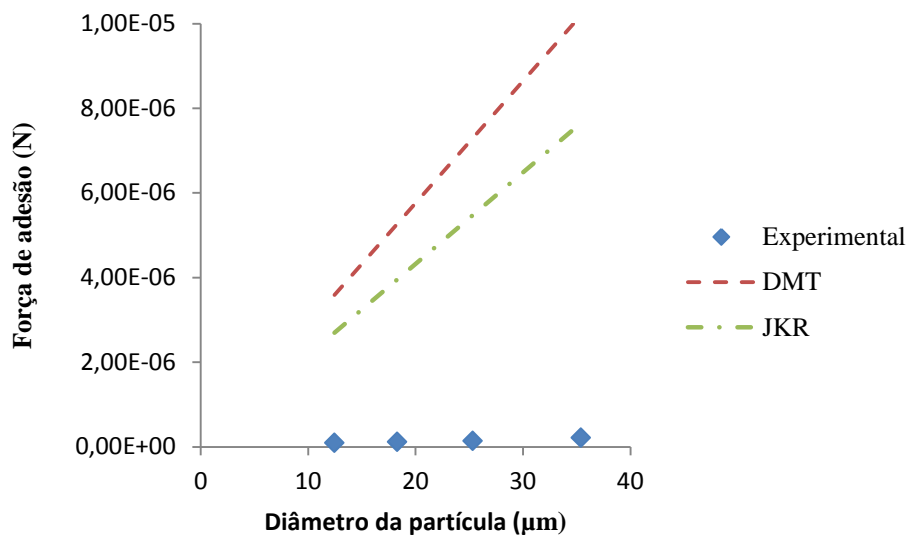
As Figuras B.1 a B.3 apresentam os resultados experimentais e os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos de (DMT) e (JKR) em função do diâmetro médio da partícula, para substrato membrana filtrante após aplicação das forças de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm.

Figura B.1 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante após press-on 1000 rpm.



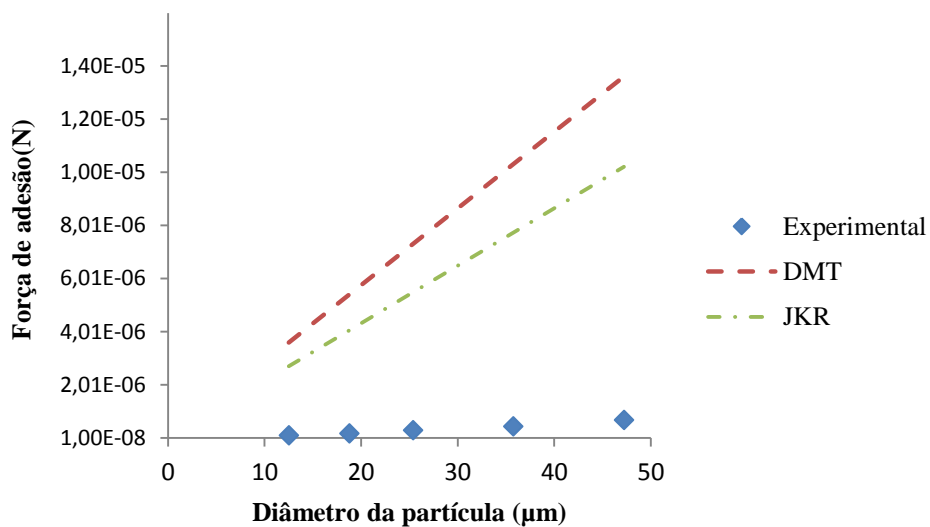
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

figura B.2 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante após press-on 2000 rpm.



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura B.3 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina e substrato membrana filtrante após press-on 5000 rpm.



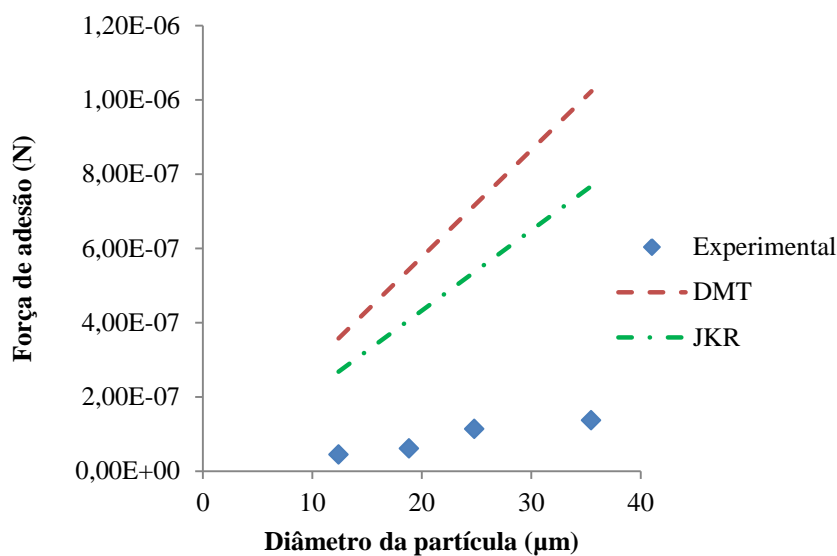
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

## **Apêndice C**

**Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial**

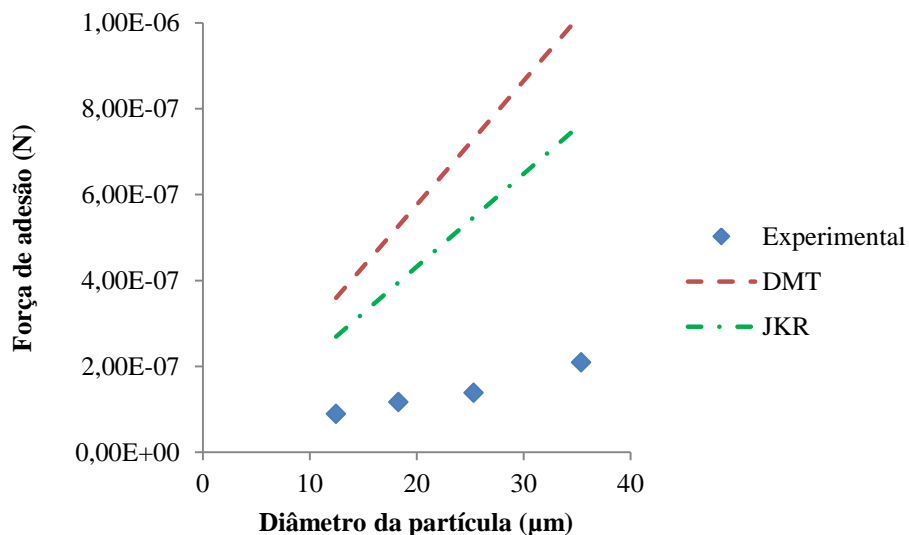
As Figuras C.1 a C.3 apresentam os resultados experimentais da força de adesão e os valores teóricos da força de adesão calculados usando os modelos de (DMT) e (JKR) em função do diâmetro médio da partícula, para substrato membrana filtrante de éster celulose após redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial, como função do diâmetro de partícula após a aplicação de press-on de 1000, 2000 e 5000 rpm.

Figura C.1 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após press-on 1000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial



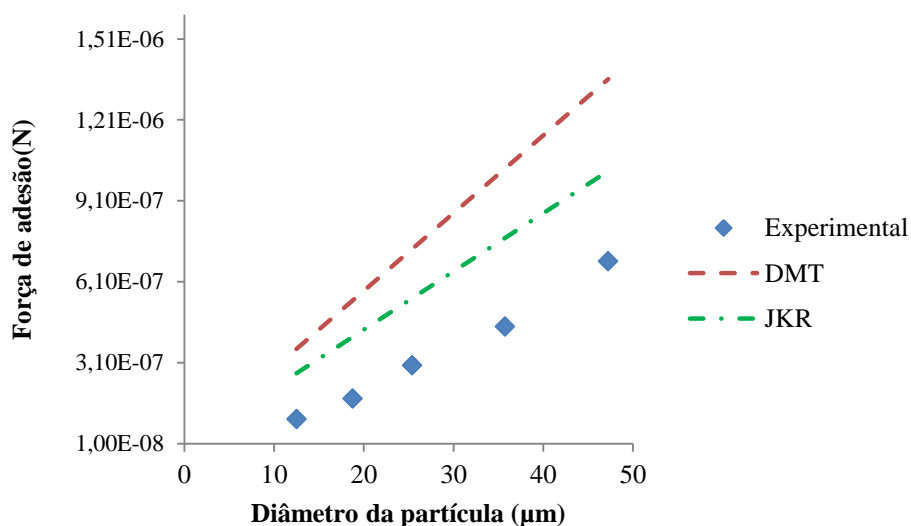
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura C.2 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após press-on 2000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura C.3 – Força de adesão teórica e experimental em função do diâmetro médio para partícula de celulose microcristalina, para substrato membrana filtrante após press-on 5000 rpm e redução de uma ordem de magnitude dos valores da tensão superficial



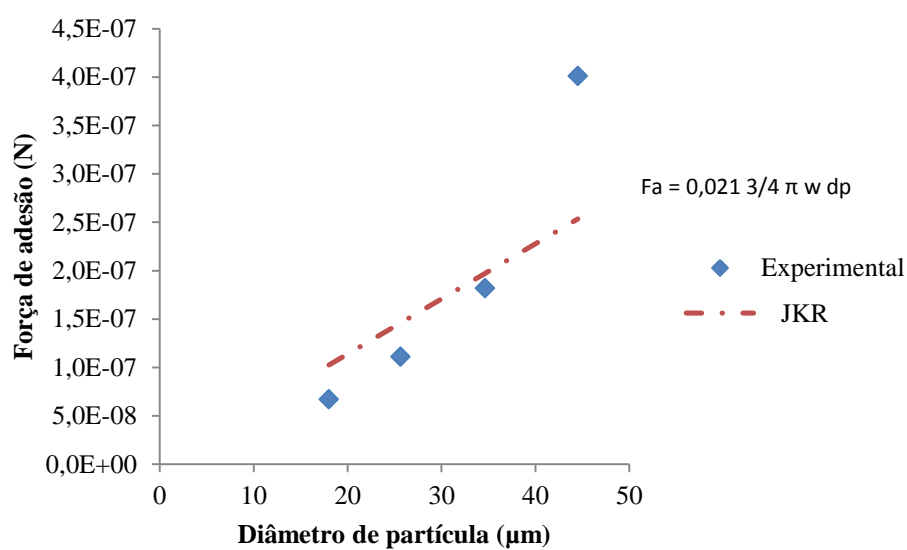
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

## **Apêndice D**

**Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000, 2000 e 5000 rpm para o substrato de vidro aço inoxidável**

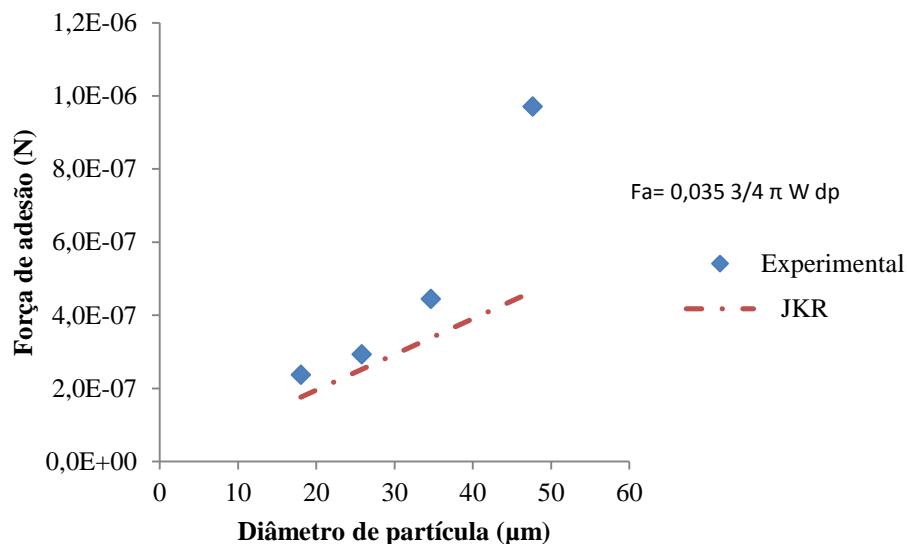
As Figuras D.1 a D.6 apresentam os gráficos da força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina para o substrato de vidro e aço inoxidável após aplicação das forças de compressão de 1000 2000 e 5000 rpm.

Figura D.1 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose micricristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato de vidro



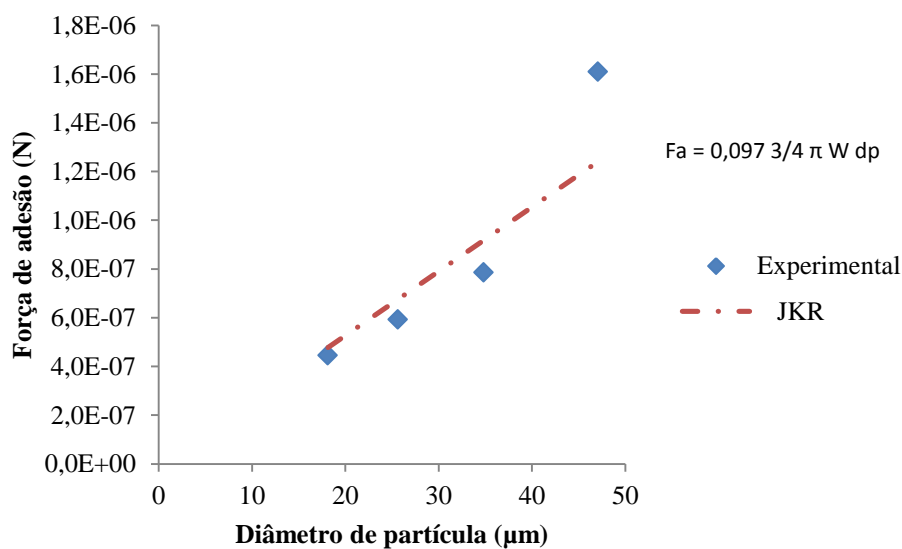
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura D.2 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para o substrato de vidro



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

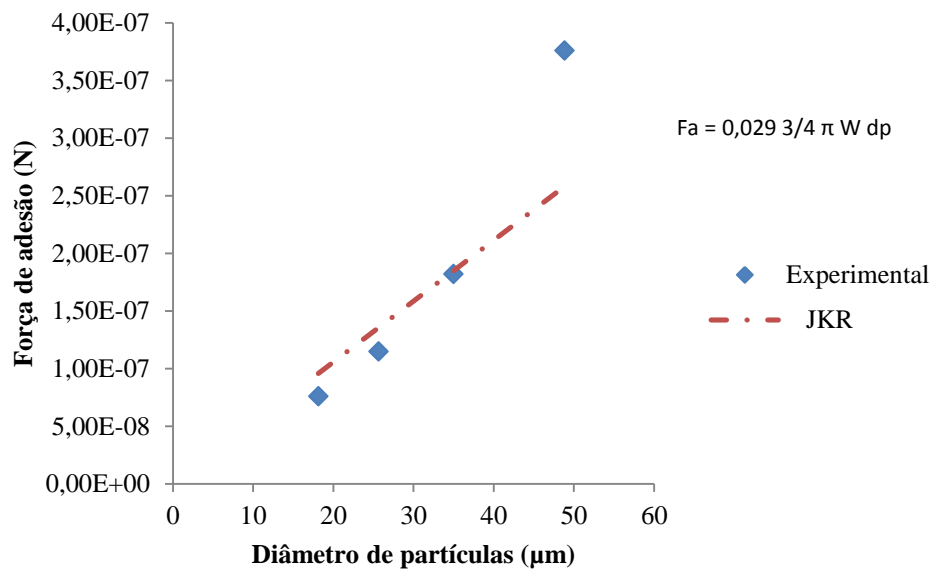
Figura D.3 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para o substrato de vidro



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

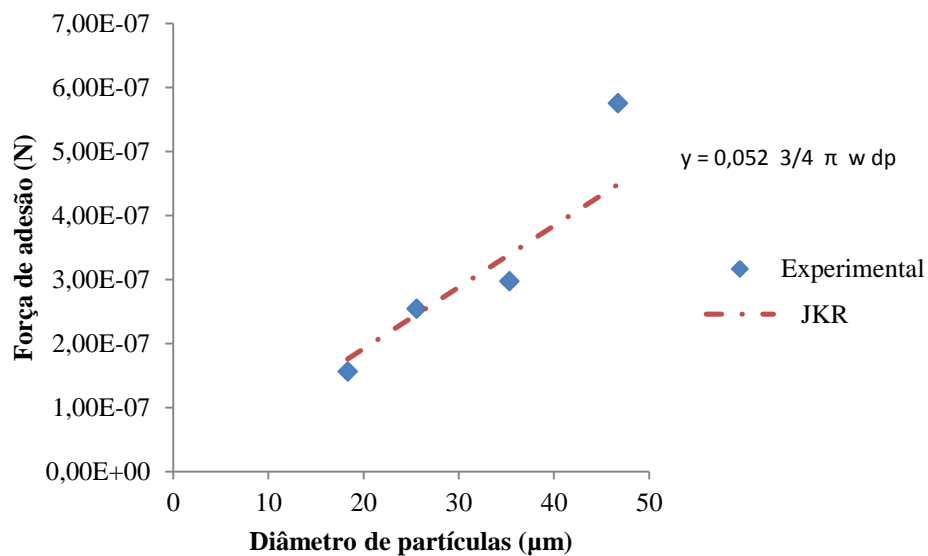


Figura D.4 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 1000 rpm para o substrato de aço inoxidável



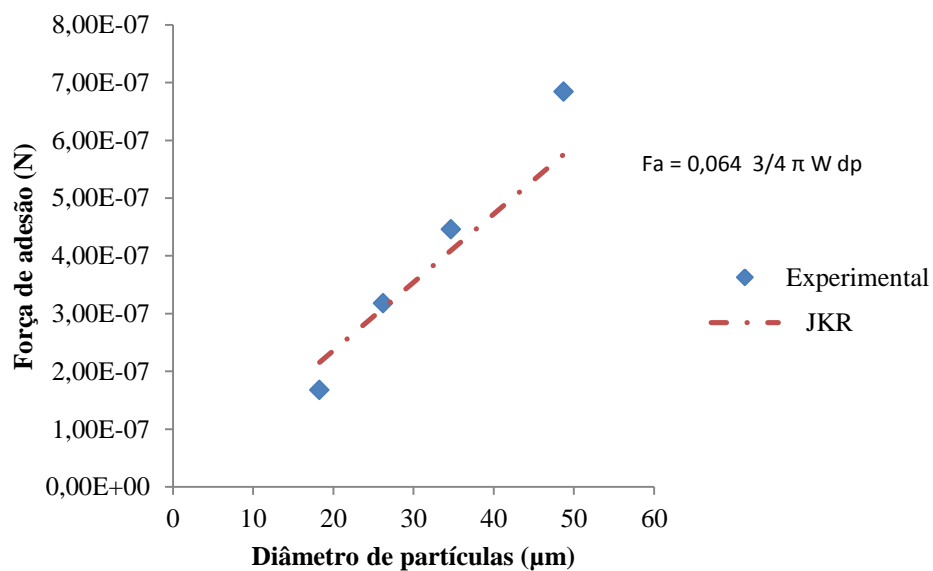
Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura D.5 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 2000 rpm para o substrato de aço inoxidável



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)

Figura D.6 – Força de adesão ajustada em função do diâmetro médio das partículas de celulose microcristalina após aplicação da força de compressão de 5000 rpm para o substrato aço inoxidável



Fonte: ACERVO PESSOAL (2014)