

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS**

**CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DE TECNOLOGIA**

**PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA**

**DESENVOLVIMENTO DE SECADOR TIPO CESTO  
ROTATIVO PARA A SECAGEM DE FOLHAS DE EUCALIPTO  
(*Corymbia citriodora*)**

**São Carlos, Março de 2015**

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS**

**CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DE TECNOLOGIA**

**PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA**

**DESENVOLVIMENTO DE SECADOR TIPO CESTO  
ROTATIVO PARA A SECAGEM DE FOLHAS DE EUCALIPTO  
(*Corymbia citriodora*)**

**Juliana Vieira de Freitas**

Aluna de Pós-graduação

**Profa. Maria do Carmo Ferreira**

Orientador PPGEQ/DEQ/UFSCar

Dissertação de Mestrado apresentada como parte dos requisitos necessários para a obtenção do título de Mestre em Engenharia Química, área de concentração em Pesquisa e Desenvolvimento de Processos Químicos.

**São Carlos, Março de 2015**

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

F866ds Freitas, Juliana Vieira de.  
Desenvolvimento de secador tipo cesto rotativo para a  
secagem de folhas de eucalipto (*Corymbia citriodora*) /  
Juliana Vieira de Freitas. -- São Carlos : UFSCar, 2015.  
88 f.

Dissertação (Mestrado) -- Universidade Federal de São  
Carlos, 2015.

1. Secagem. 2. Transferência de calor e massa. 3.  
Secadores rotativos. I. Título.

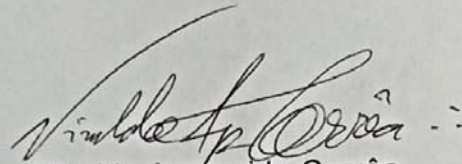
CDD: 660.28426 (20<sup>ª</sup>)

MEMBROS DA BANCA EXAMINADORA DA DEFESA DE DISSERTAÇÃO DE JULIANA VIEIRA DE FREITAS APRESENTADA AO PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA DA UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS, EM 12 DE MARÇO DE 2015.

BANCA EXAMINADORA:



Maria do Carmo Ferreira  
**Orientadora, UFSCar**



Nivaldo Aparecido Corrêa  
**USP**



José Teixeira Freire  
**UFSCar**

Dedico este trabalho a todos  
que de alguma forma contribuíram  
para a sua realização.

## AGRADECIMENTOS

Primeiramente agradeço à Deus por ter me concedido a vida.

Agradeço aos meus pais, Pedro e Sandra, aos meus avós Francisca e José, ao meu irmão Juninho e à toda minha família, pela força e pelo apoio que me deram no andamento deste curso.

À minha orientadora, Maria do Carmo, pela orientação, paciência e todo o apoio que me deu durante o desenvolvimento deste trabalho.

Aos professores do Centro de Secagem, Dermeval, Gustavo Maia, Ronaldo, Thiago, Fábio, Rodrigo, e em especial ao Prof. José Teixeira Freire pela contribuição ao meu trabalho.

Ao técnico do departamento, Oscar, por sempre ter se esforçado para que tudo ficasse pronto para a realização dos meus experimentos.

Ao técnico Edílson e ao jardineiro Seu Antônio, por sempre terem me ajudado na coleta do material. Sua colaboração foi essencial!

Ao Marcos Paulo pela amizade, por sempre me ajudar e me dar conselhos para que eu pudesse fazer o melhor.

Aos companheiros de estudo: Candara, Adriana, Marília, e Vinícius, por tudo que passamos juntos, pois sem eles os dias de estudo seriam muito mais árduos e cansativos.

Ao pessoal do Centro de Secagem: Aline, Ariane, Maisa, Tércio, Danilo, Adriana, Robinho, Gustavo, e Geisa pelo apoio durante o andamento do trabalho.

Às antigas colegas de casa: Natália, Larissa e Simone, com quem morei por quase 2 anos. E agradeço à Isabela Lemos, pela amizade e pelos momentos de alegria nos últimos meses que moramos juntas.

Às novas colegas de casa: Isabela, Thaís, Daniele, Verônica, Elaine e Aline por terem me recebido muito bem na minha nova casa.

À minha amiga Karina Higuti pela amizade e o carinho que sempre teve comigo apesar da distância entre nós.

Às novas amigas que fiz neste ano e que quero levar pra vida toda: Jakeline e Luana. Em pouco tempo que nos conhecemos, tivemos muitos momentos de alegria.

Ao técnico Guilherme do laboratório de Cromatografia da USP de São Carlos, pela disponibilidade de realizar as análises do óleo essencial.

À todos os alunos do DEQ/UFSCar que convivi durante esses 2 anos.

À todos os funcionários do DEQ/UFSCar pela assistência durante o curso.

E à Fundação Capes pelo auxílio financeiro.

*“Não há quem sustente uma luta mais árdua do  
que aquele que se tenta vencer a si próprio”.*

*Thomas Kempis*



## RESUMO

O objetivo deste trabalho é o desenvolvimento de um secador para a secagem de folhas, tipo rotativo. Este secador foi construído com a finalidade de permitir uma boa mistura das folhas durante a secagem, de forma a obter um produto final com umidade homogênea e boa qualidade. O secador consiste de um cilindro construído de tela metálica perfurada, acoplado a um motor que permite a sua rotação em torno do eixo do cilindro. O ar fornecido por um soprador é aquecido e alimentado através das paredes laterais do cilindro, no sentido perpendicular ao seu eixo. Para a secagem de folhas de eucalipto, foram avaliadas a reprodutibilidade dos dados e a homogeneidade da secagem no cesto rotativo em relação à secagem em leitos fixos usando diferentes formas de contato entre o ar e o material, e também ao secador rotativo convencional. Para a avaliação da qualidade do produto final, foi analisada a influência da secagem na cor das folhas, no teor de óleo extraído e na concentração de citronelal presente no óleo. Os dados de cinética foram reprodutíveis entre as repetições na faixa de condições investigada. Observou-se que o conjunto de folhas aumenta de volume durante a secagem no cesto rotativo, sendo o volume do conjunto de folhas secas até 3 vezes superior ao volume do conjunto das folhas *in natura*. Os testes indicaram que o cesto rotativo proporciona a secagem uniforme das folhas se comparada à secagem em leitos fixos e em secador rotativo convencional, com variação muito pequena entre as umidades, e umidade final média de  $7,3 \pm 0,3\%$  para 50 g de folhas. Constatou-se que para uma boa operação na secagem de folhas de eucalipto, o volume de folhas *in-natura* não deve ultrapassar 10% do volume útil do secador. A secagem no secador tipo cesto rotativo não provocou o escurecimento das folhas e não influenciou o teor de óleo essencial.

## ABSTRACT

The objective of this work is the development of a rotary type dryer for drying leaves. This dryer was built with the purpose of ensuring a proper mixing of the leaves during drying, to obtain a final product with homogeneous moisture and good quality. The dryer consists of a cylinder built with perforated metal screen, coupled to a motor which allows its rotation around the cylinder axis. Air supplied by a blower is heated and fed through the cylinder side walls, perpendicularly to its axis. For drying of eucalyptus leaves, it was evaluated the reproducibility of the data and the homogeneity of the rotary drying basket in comparison to fixed-bed drying configurations using different forms of contact between the air and the material, and also to the conventional rotary drum dryer. To evaluate the quality of the final product, it was analyzed the influence of drying in color of leaves, extracted oil content and the concentration of citronellal in the oil. The kinetic data showed good reproducibility between the repetitions in the range of conditions investigated. It was observed that the set of leaves increased in volume during drying in the rotating basket, and the whole volume of dried leaves was 3-fold the fresh leaves volume. The tests indicated that the rotating basket provided uniform drying of the leaves as compared to drying in fixed beds and conventional rotary drum dryer, with small variation of moisture and average final moisture of  $7.3 \pm 0.3$  % in drying of 50 g of leaves. For a good performance in drying eucalyptus, the volume of fresh leaves should not exceed 10% of the basket volume. The drying in the rotating basket have not provoked browning of the leaves and did not influence the essential oil content.

## SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO.....	16
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA .....	18
2.1. Secagem de folhas aromáticas .....	18
2.2. A espécie <i>Corymbia citriodora</i> .....	28
2.3. Óleos essenciais.....	30
2.3.1. Mercado de óleos essenciais .....	33
2.3.2. Métodos de extração de óleo essencial .....	33
3. MATERIAIS E MÉTODOS.....	36
3.1. Materiais .....	36
3.2. Caracterização da folha <i>in natura</i> .....	36
3.2.1. Dimensões características .....	36
3.2.2. Massa específica aparente da folha .....	37
3.2.3. Umidade inicial em base úmida (b.u.) .....	37
3.2.4. Teor de óleo essencial.....	38
3.2.5. Densidade <i>bulk</i> .....	38
3.3. Secagem.....	38
3.3.1. Construção do Secador Tipo Cesto Rotativo .....	39
3.3.2. Determinação das variáveis de operação .....	42
3.3.3. Medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar.....	43
3.3.4. Procedimento experimental .....	43
3.3.5. Avaliação da homogeneidade da secagem.....	45
3.4. Avaliação da qualidade das folhas secas.....	50
3.4.1. Determinação da alteração de cor das folhas .....	50
3.4.2. Teor de óleo essencial obtido das folhas secas .....	51

3.4.3.	Análise da concentração de citronelal no óleo .....	51
4.	RESULTADOS E DISCUSSÕES .....	53
4.1.	Caracterização das folhas.....	53
4.2.	Avaliação da secagem .....	54
4.2.1.	Testes preliminares das medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar .....	54
4.2.2.	Reprodutibilidade da cinética de secagem.....	55
4.2.3.	Avaliação das variáveis operacionais .....	57
4.2.4.	Avaliação da eficiência da uniformidade da secagem no secador tipo cesto rotativo .....	62
4.2.5.	Avaliação da influência da temperatura na cinética de secagem das folhas .....	73
4.3.	Avaliação da qualidade final das folhas secas .....	74
4.3.1.	Alteração das coordenadas colorimétricas ( $L^*$ , $a^*$ e $b^*$ ) das folhas.....	74
4.3.2.	Avaliação do teor de óleo (b.s.) essencial das folhas secas em relação à folha <i>in natura</i> .....	77
4.3.3.	Concentração de citronelal no óleo.....	79
5.	CONCLUSÕES.....	81
6.	SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS.....	83
7.	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	84

## LISTA DE FIGURAS

Figura 2.1: Classificação dos secadores baseada no método de operação.....	21
Figura 2.2: Cascadeamento do material.....	27
Figura 2.3: Esquema de corte transversal de uma folha .....	29
Figura 2.4: Folha de <i>Corymbia citriodora</i> observada contra a luz .....	30
Figura 3.1: Imagem das folhas de diferentes tamanhos e formatos .....	36
Figura 3.2: Esquema de medição da espessura da folha nas posições demarcadas pelos círculos pretos.....	37
Figura 3.3: Esquema do cesto rotativo .....	39
Figura 3.4: Imagem das telas perfuradas .....	39
Figura 3.5: Imagem do cesto inserido no duto de escoamento de ar em vista lateral direita.....	40
Figura 3.6: Vista lateral da linha de fornecimento de ar e secador tipo cesto rotativo .....	41
Figura 3.7: Imagem das folhas dispostas no cesto .....	41
Figura 3.8: Esquema de medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar em vista frontal da linha .....	43
Figura 3.9: Esquema de coleta de folhas do cesto para avaliação da homogeneidade .....	45
Figura 3.11: Esquema de coleta de folhas: A, B, C, e D correspondem às amostras coletadas no sentido radial (a) e 1, 2 e 3 à altura do leito (b).....	46
Figura 3.10: Leito fixo com escoamento de ar ascendente .....	46
Figura 3.12: Imagem da bandeja perfurada .....	47
Figura 3.13: Esquema de secagem das folhas na bandeja inserida no interior do duto de escoamento de ar (vista lateral) .....	47
Figura 3.14: Esquema de localização das provetas e bandejas na prateleira 3 da estufa.....	49
Figura 3.15: Estufa com renovação e circulação de ar MA 037 .....	49
Figura 3.16: Representação esquemática de suspensores angulares .....	49
Figura 3.17: Esquema de coleta das folhas para determinação de umidade .....	50
Figura 3.18: Sistema tridimensional Cielab .....	51

Figura 4.1: Medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar .....	55
Figura 4.2: MR em função do tempo parametrizado em 50 g .....	56
Figura 4.3: Ilustração da padrão de escoamento das folhas no interior do cesto (massa de 50 g). .....	56
Figura 4.4: Gráfico de pareto para o tempo de secagem .....	59
Figura 4.5: Superfície de resposta para o tempo de secagem das folhas.....	59
Figura 4.6: Esquema de 100 g folhas secas em vista lateral do cesto em movimento de rotação .....	60
Figura 4.7: Conjunto de folhas antes (a) e após a secagem (b) para 100 g de folhas .....	61
Figura 4.8: Umidades finais (b.u.) para 50 g após 1,5 h de secagem .....	62
Figura 4.9: Umidades finais (b.u.) para 100 g após 2 h de secagem .....	63
Figura 4.10: Esquema de coleta de folhas: 1, 2 e 3 correspondem à altura do leito .	64
Figura 4.11: Umidades após 2h de secagem (b.u.) obtidas na secagem em leito fixo com escoamento de ar ascendente .....	65
Figura 4.12: Umidades (b.u.) após 2 h de secagem obtidas para o leito fixo com escoamento de ar horizontal em 0,75 m/s.....	66
Figura 4.13: Umidades após 2 h de secagem (b.u.) obtidas para o leito fixo com escoamento de ar horizontal a 1,5 m/s.....	67
Figura 4.14: Esquema de localização da bandeja na estufa .....	68
Figura 4.15: Taxa de evaporação dá água na prateleira 2 .....	68
Figura 4.16: Teste de evaporação da água na prateleira 3.....	69
Figura 4.17: Taxa de evaporação da água a prateleira 4 .....	69
Figura 4.18: Taxa de evaporação da água na prateleira 6 .....	69
Figura 4.19: Umidades (b.u.) obtidas em diferentes posições para a estufa industrial após 2 h de secagem. ....	70
Figura 4.20: Imagem das folhas localizadas na altura 1 (a) e na altura 2 da bandeja (b).....	71
Figura 4.21: Representação esquemática das folhas localizadas no secador ao final do processo.....	72
Figura 4.22: Umidades finais (b.u.) obtidas para o secador rotativo convencional após 2h em 70°C.....	73

Figura 4.23: MR médio em função do tempo para 50 g parametrizados na temperatura do ar .....	74
Figura 4.24: Valores médios de L* .....	75
Figura 4.25: Valores médios de a* .....	76
Figura 4.26: Valores médios de b* .....	77
Figura 4.27: Teor de óleo essencial (b.s.) para os diferentes tratamentos em relação à folha <i>in natura</i> .....	78
Figura 4.28: Cromatograma do citronelal para a folha <i>in natura</i> com os tratamentos de secagem sobrepostos .....	79
Figura 4.29: Concentração do citronelal (g/ml) no óleo extraído das folhas secas em relação à folha <i>in natura</i> .....	79

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Principais componentes químicos do óleo essencial do <i>Corymbia citriodora</i> e suas propriedades físico-químicas. ....	28
Tabela 2: Variáveis e níveis adotados no planejamento $2^{4-1}$ .....	44
Tabela 3: Propriedades físicas e físico-químicas das folhas <i>in natura</i> .....	53
Tabela 4: Coeficientes de regressão para o tempo de secagem .....	58



## NOMENCLATURA

A.C.	Antes de Cristo
b.s.	Base seca
b.u.	Base úmida
CG	Cromatografia gasosa
$m_f$	Massa de folhas (g)
$M_{H_2O}$	Massa de água (g)
$m_o$	Massa de óleo (g)
$m_p$	Massa do produto (g)
$m_s$	Massa do produto seco (g)
P	Pressão
R	Teor de óleo essencial (%)
T	Temperatura (°C)
U	Conteúdo de umidade (%)
$U_{bs}$	Conteúdo de umidade em base seca (%)
$U_{bu}$	Conteúdo de umidade em base úmida (%)
$U_i$	Conteúdo de umidade inicial (%)
$V_b$	Volume do leite (cm <sup>3</sup> )
$V_p$	Volume da partícula (cm <sup>3</sup> )
R	Repetição
W	Watts
	Letra grega
$\rho_p$	Massa específica do produto (g/cm <sup>3</sup> )
$\rho_b$	Massa específica do leite (g/cm <sup>3</sup> )

## 1. INTRODUÇÃO

O uso de plantas aromáticas, sendo na forma de cascas, folhas ou sementes existe desde épocas A.C., sendo muito empregadas na medicina, cosmética e em cerimônias religiosas. Há relatos de que a origem dessa utilização esteja ligada aos países orientais como o Egito, Pérsia, Japão, China e Índia (LA CRUZ, 2010).

Essas plantas possuem compostos voláteis chamados óleos essenciais ou essência, que são constituídos de vários compostos químicos e podem ser extraídos por vários métodos, que dependem da sua localização na planta. A essência tem inúmeras aplicações na indústria farmacêutica, alimentícia e cosmética.

A secagem contribui para a preservação das plantas, reduzindo o seu conteúdo de umidade, inibindo a ação enzimática e a proliferação de fungos e microorganismos. Para plantas produtoras de óleo essencial, é possível elevar a produtividade do óleo, pois a secagem diminui a massa das folhas, sendo possível aumentar a quantidade de folhas no hidrodestilador. Para que as suas propriedades sejam preservadas, para cada espécie ou parte da planta deve ser escolhido um método adequado de secagem.

Um dos problemas observados na secagem convectiva de folhas em secadores de esteira ou de bandejas, nos quais camadas de leito fixo do material são colocadas em contato com o ar, é a formação de gradientes de umidade e temperatura, que resultam em uma secagem heterogênea e em produtos com distribuição de umidade não uniforme. Apesar de sua importância, a homogeneidade da umidade do produto após a secagem, nem sempre é avaliada pelos pesquisadores do tema. Na secagem de folhas em estufa ou bandejas, este problema é usualmente minimizado utilizando-se uma camada-fina de folhas e revolvendo-se manualmente o material em intervalos de tempo. Contudo, para a secagem em grandes quantidades, este método é pouco prático e limita a automação do processo.

Desta forma, o objetivo deste trabalho é o desenvolvimento de um secador para folhas que proporcione uma secagem uniforme e um produto de boa qualidade e homogêneo. O secador é para folhas em geral, e será testado

avaliando-se a secagem de folha de eucalipto (*Corymbia citriodora*). No Brasil, as espécies de eucalipto produtoras de óleos essenciais mais comuns são a *Corymbia citriodora*, *Eucalyptus globulus* e *Eucalyptus staigeriana*, que são extraídos das suas folhas.

No trabalho foi avaliada a secagem e a homogeneidade do produto seco obtido no cesto rotativo, a qual foi comparada com a homogeneidade obtida para outras configurações de secagem, como em leito fixo, em estufa comercial e no secador rotativo convencional. Foi analisado, também, o efeito da secagem sobre a mudança de cor das folhas após o processo, e sobre as propriedades do óleo essencial, avaliando-se o teor de óleo e concentração do citronelal do óleo extraído das folhas secas e comparando-se aos da folha *in natura*.

## 2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

A seguir será apresentada uma revisão bibliográfica sobre a secagem de folhas aromáticas, além de informações sobre a espécie *Corymbia citriodora* e os óleos essenciais que estão presente nas folhas.

### 2.1. Secagem de folhas aromáticas

Materiais biológicos são classificados de acordo com suas estruturas e formas como a água se encontra ligada em seu interior. Considerando a grande variedade de materiais biológicos tanto do ponto de vista da constituição como da sua estrutura, nem sempre é possível uma especificação precisa da forma de ligação da umidade no material. Em geral, considera-se que estes materiais pertencem às substâncias coloidais-capilares-porosas em que todas as formas de ligação de umidade no material são possíveis. Assim, em um produto biológico, há várias formas de ligação da água, que têm diferentes funções e efeitos na preservação da qualidade e deterioração, sendo estas a água livre e a água ligada (ADAMIEC *et al.*, 1995).

As diferentes partes de uma espécie vegetal seja folha, flor, raiz ou casca, quando recém-colhidas, apresentam um elevado conteúdo de umidade e substratos que favorecem a ação enzimática, que compreende diversas reações. À medida que se retira umidade do material, essa ação enzimática é reduzida, diminuindo alterações na aparência e no aroma. Daí a necessidade da secagem (MOCHI, 2005). Porém, se o material não é seco adequadamente, há um meio propício para ocorrência de reações como: escurecimento, oxidação e hidrólise, comprometendo a qualidade do material (GASPARIN, 2012).

Segundo Kaya e Aydin (2009) o aumento da popularidade das ervas tem aumentado sua importância comercial. Como em geral elas são comercializadas na forma seca, a determinação das características da secagem é importante para a sua preservação e o armazenamento em longos períodos. O consumo de plantas medicinais frescas garante ação mais eficaz dos princípios ativos, porém, nem sempre há disponibilidade destas para uso imediato, e a secagem, quando bem conduzida, é vantajosa para a conservação dos produtos (CORRÊA *et al.*, 2002).

A maioria dos princípios ativos, que são os metabólitos secundários presentes nas plantas, são os componentes responsáveis pela atividade terapêutica,

e pode ser alterada tanto por fatores ambientais como por procedimentos pós-colheita, como a secagem (MARCHESE; FIGUEIRA, 2005). Os constituintes aromáticos presentes nas plantas medicinais são os componentes mais sensíveis ao processo de secagem. O efeito desta sobre a composição de substâncias voláteis tem sido pesquisado, a fim de demonstrar que as variações nas concentrações dos constituintes, dependem de vários fatores, tais como o método de secagem, temperatura do ar de secagem, características fisiológicas, além de conteúdo e tipo de componentes químicos presentes nas plantas (GASPARIN, 2012).

A escolha de um secador apropriado a fim de obter um produto com as propriedades desejadas, depende de vários fatores envolvidos no processo de secagem. Keey (1978) sugeriu que os principais são: a forma de transferência de calor, a temperatura e pressão de operação e a forma que o material é manuseado dentro do secador.

Para Mujumdar (1995) as informações minimamente necessárias para escolha de um secador são as seguintes:

- Taxa de produção requerida do secador e forma de produção da matéria-prima (batelada/contínua);
  - Propriedades físicas, químicas e bioquímicas do material úmido, bem como as especificações do produto seco;
  - *Upstream* e *downstream* do processamento;
  - Conteúdo de umidade inicial;
  - Cinética de secagem; isotermas de sorção do material úmido;
  - Parâmetros de qualidade (física, química e bioquímica);
  - Aspectos de segurança, por exemplo, risco de incêndio e explosão e toxicidade;
  - Valor do produto final;
  - Necessidade de controle automático;
  - Propriedades toxicológicas do produto;
  - Relação entre a capacidade máxima e mínima do equipamento;
- flexibilidade nos requisitos de capacidade;
- Tipo e custo do combustível; custo de energia elétrica;
  - Regulamentos ambientais;
  - Espaço físico disponível na planta.

Verifica-se que as especificações na escolha de um secador são muitas, e muitas vezes, algumas especificações podem ser mais relevantes que outras. Por exemplo, no caso de um produto de alto valor agregado, onde a qualidade final é extremamente importante, o custo da secagem não é a variável mais importante a ser considerada, uma vez que representará uma parcela pequena do custo final do produto.

Os secadores podem apresentar diversas dimensões e permitir várias formas de contato entre a fase sólida e a fluida. Geralmente, são equipamentos de alto valor agregado, no que se refere à aquisição, instalação e quantidade de energia consumida durante a operação de secagem. Estes podem ser classificados quanto à forma de transmissão de calor: contato direto e indireto (BICALHO *et al.*, 2010).

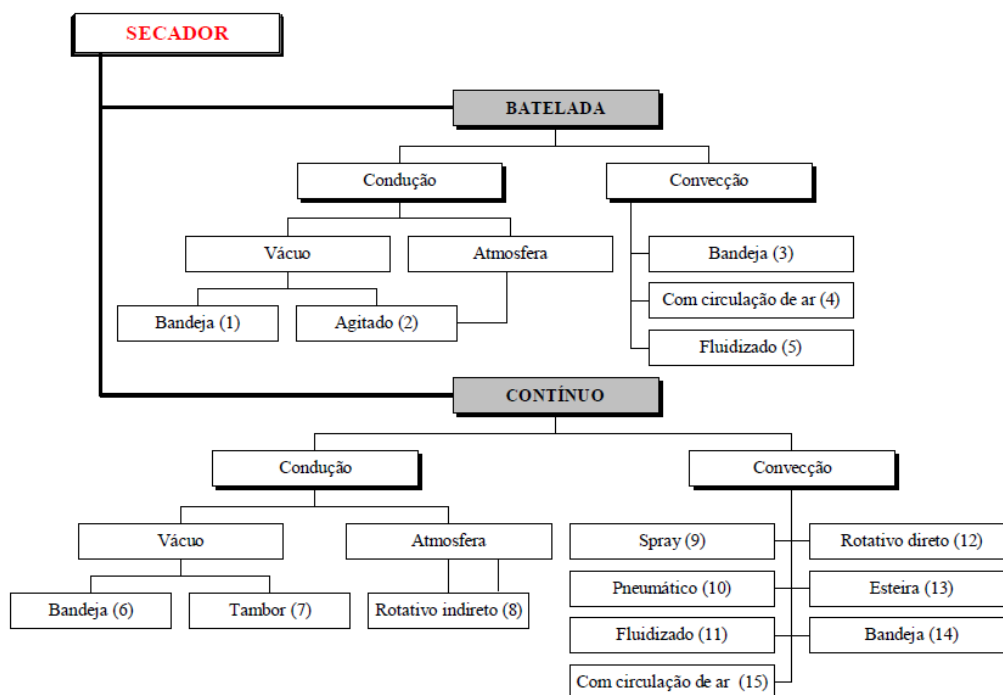
Há muitas informações abordadas na literatura sobre a seleção de secadores, e na sua escolha, um dos quesitos importantes é o manuseio do material a ser seco, onde para cada material há um ou mais métodos adequados, a fim de se obter os requisitos desejados ao produto, como a manutenção da qualidade e características ao final do processo (MUJUMDAR, 1995).

De acordo com Nonhebel e Moss (1971) citados por Park *et al.*, (2007), os secadores podem ser classificados com base no método de operação, conforme a Figura 2.1. Nesta figura, os materiais recomendados para cada secador, segundo a numeração indicada são os seguintes:

1. Pastas, pré-moldados, granulares, fibrosos e folhas;
2. Líquidos, lama, pastas e granulares;
3. Pastas, pré-moldado, granulares, fibrosos e folhas;
4. Pré-moldado, granulares e fibrosos;
5. Pré-moldado, granulares e fibrosos;
6. Lama e pastas;
7. Líquidos, lama, pastas e folhas;
8. Granulares e fibrosos;
9. Líquidos, lama e pastas;
10. Pastas, pré-moldado, granulares e fibrosos;
11. Pastas, pré-moldado, granulares e fibrosos;
12. Granulares e fibrosos;
13. Pastas, pré-moldado, e folhas;

14. Pastas, pré-moldado, granulares, fibrosos e folhas;
15. Pré-moldado, granulares e fibrosos.

Figura 2.1: Classificação dos secadores baseada no método de operação



Fonte: Park *et al.* (2007)

Observa-se que há uma variedade grande de equipamentos que podem ser utilizados para os diversos materiais, com características físicas e químicas muito distintas entre si e para um mesmo produto podem ser utilizados vários métodos de secagem. Para os materiais granulares, por exemplo, podem ser usados os secadores de bandeja, agitados, de tambor, fluidizado e rotativo indireto (Figura 2.1). Esses tipos de materiais geralmente possuem formas geométricas definidas e estruturas resistentes, adequando-se a diversos tipos de secadores.

Os equipamentos sugeridos para a secagem de folhas são mais restritos, sendo considerados adequados, segundo o critério ilustrado na Figura 2.1, os secadores de bandeja, esteira e o tambor rotativo. As folhas se apresentam em várias espécies com propriedades muito distintas entre si, como a tonalidade da cor verde, tamanhos, formas, composição química e resistência mecânica. Além disso, uma mesma espécie de planta pode apresentar características distintas, pois as folhas em geral possuem diferentes tamanhos e formatos dependendo da sua

posição na planta. Logo, a escolha de um secador deve se adequar às características peculiares de cada espécie de planta e mesmo, para uma mesma espécie, deve ser versátil o suficiente para processar materiais com características variáveis.

O tipo de secador a ser selecionado depende também da finalidade almejada ao produto final. Para as folhas, as aplicações finais visam em geral as indústrias alimentícia, de cosméticos e a farmacêutica. Na indústria alimentícia, as plantas são matéria-prima para chás e temperos, e na farmacêutica e cosmética, são utilizados os óleos essenciais e extratos obtidos das plantas na formulação dos seus produtos. Na indústria alimentícia, muitas vezes é desejado que a aparência da folha ao final da secagem seja similar à da folha *in natura*, visto que para os consumidores, a aparência é um importante atributo de qualidade, logo, são recomendados métodos que preservem essa propriedade. Para as ervas medicinais, Mujumdar (1995), cita entre os tipos de secadores que podem ser usados, além dos secadores de bandeja e esteira, as estufas e leitos fluidizados. Muitas ervas são plantas delicadas e quando secas tornam-se frágeis e quebradiças, assim, recomenda-se que as ervas sejam secas em camadas estacionárias, em esteiras e bandejas, para evitar danos ao produto. Os secadores de bandeja são utilizados em pequena escala de produção, no qual os produtos devem ser distribuídos em camada fina, já os secadores de esteira podem ser utilizados para produção em larga escala. Folhas de estrutura mais resistente, por sua vez, como as de eucalipto, louro ou similares, são mais adequadas para a secagem em equipamentos com movimentação mecânica, como os secadores rotativos.

A secagem de plantas deve ser realizada até atingir umidade na faixa de 8% a 12% b.u., conforme a espécie e a parte da planta. Quanto maior a temperatura e a vazão de ar, mais rápida é a secagem e com base nisso, alguns pesquisadores vêm estudando o efeito da secagem sobre a qualidade do óleo essencial extraído de determinadas plantas aromáticas (ROCHA, 2011). O uso de temperaturas muito altas pode provocar a perda de compostos voláteis, pois são altamente sensíveis, assim, para cada espécie há um limite de temperatura do ar utilizado, que varia conforme o tipo de secador a ser utilizado. Alguns trabalhos encontrados na literatura sobre a secagem convectiva de folhas, e os efeitos desta sobre as suas propriedades serão descritos a seguir.



Radunz *et al.*, (2003) secaram folhas de guaco em secador de bandejas com escoamento de ar ascendente utilizando temperaturas do ar ambiente, 40, 55 e 70°C e velocidade do ar de 0,5 m/s. Os autores concluíram que a melhor temperatura para obter a mínima alteração do teor de óleo essencial foi de 55°C e com temperatura do ar ambiente as folhas apresentaram escurecimento e aparecimento de fungos.

Szumny (2010) utilizou 3 métodos de secagem de folhas de alecrim cortadas de 2 e 3 cm juntamente com os ramos, sendo a secagem convectiva (60°C e 1,2 m/s), por microondas (360 e 480 W) e a combinação das duas, fazendo uma pré-secagem convectiva seguida da secagem por microondas. Concluiu que a combinação dos métodos de secagem foi a melhor condição, resultando em menores perdas no conteúdo volátil.

Mochi (2005) secou folhas de *Eucalyptus camaldulensis* em secador de leito fixo com ar em escoamento ascendente, utilizando temperaturas de 35 a 70°C e velocidade de 0,6 m/s. Observou que conforme a temperatura foi aumentada, o teor de óleo essencial quadruplicou e o teor de cineol aumentou gradualmente em relação ao teor obtido para a extração da folha *in natura*.

Buchaillot, Caffin e Bhandari (2009) secaram folhas de limão murta em leito fluidizado utilizando temperaturas de 30, 40 e 50°C com vazão de ar de 0,08 m<sup>3</sup>/s, observaram que conforme a temperatura do ar foi aumentada, houve a perda gradual de cor das folhas.

Entre os trabalhos citados, foram utilizados para a secagem configurações em que o ar escoava sobre a superfície das amostras, como nos secadores de bandejas ou em escoamento ascendente através de um leito fixo formado pelo material. Nestas configurações pode ocorrer a formação de gradientes de umidade e temperatura no leito, visto que, quando o ar seco não entra em contato com as amostras de maneira uniforme ou tem suas condições alteradas na direção do escoamento à medida que absorve umidade das camadas inferiores, prejudica a transferência de massa. Segundo Castro (1992), para evitar essa heterogeneidade, devem ser tomados cuidados com a espessura da camada do produto, uso de temperaturas adequadas e tempo de revolvimento do material.

São encontrados na literatura muitos trabalhos que utilizam equações empíricas e semiempíricas simplificadas para descrever a cinética de secagem de folhas em leitos fixos, como Costa (2013) na secagem de folhas de hortelã e Kaya e

Aydin (2009) na secagem de algumas ervas em camada fina. No entanto, poucos informam a espessura da camada ou as metodologias de minimização de gradientes de umidade e temperatura, ocorrência de encolhimento ou deformação do material. Como exemplo, Gasparin *et al.* (2014) utilizaram o secador de bandejas na secagem de folhas de hortelã, mas não apresentaram qual a altura da camada fixa de folhas utilizada e Radunz *et al.* (2003) que também fizeram secagem em bandejas, utilizando uma camada de 15 cm de folhas de guaco, não mencionaram se foi utilizada alguma técnica a fim de minimizar os efeitos de gradientes de temperatura e umidade, como por exemplo o revolvimento do material durante o processo. A técnica de revolver o material pode minimizar os gradientes de forma expressiva. Com o propósito de melhorar o processo de secagem de café em leito fixo, utilizando temperatura de  $42,7 \pm 2,1^\circ\text{C}$ , Campos (1998) fez estudos em câmaras de secagem com e sem revolvimento mecânico do material. Foi verificado que a câmara que teve o revolvimento, apresentou o menor gradiente de umidade, sendo de 0,7% (b.u.). Para as câmaras sem revolvimento, as variações foram maiores, entre  $22 \pm 2\%$  e  $36 \pm 2\%$ .

Alguns autores relataram que na secagem de folhas em leitos fixos sem revolvimento do material, a secagem não ocorreu de forma homogênea:

- Lima (2013) mostrou que a secagem em leito fixo tanto em camada espessa, quanto em camada fina de folhas de manjeriço também não foi eficiente. A autora constatou que as folhas encolhem de forma significativa durante o processo e mudam a estrutura do leito. Com isso, as curvas de umidade em função do tempo não foram reprodutíveis, pois as alterações na estrutura do leito durante a secagem interferiam no processo, resultando em diferentes curvas de cinética para um mesmo tratamento. Assim, os ajustes de modelos matemáticos aos dados experimentais de cinética de secagem de folhas, apesar de serem muito encontrados na literatura, segundo a autora, são pouco confiáveis, já que a sua reprodutibilidade não é normalmente verificada. Na secagem em camada espessa (utilizando temperaturas de 30, 45 e  $60^\circ\text{C}$ ), Lima observou que houve gradientes de temperatura ao longo do leito, sendo estes mais intensos para a temperatura de  $60^\circ\text{C}$ , e após o processo de secagem, foi possível notar visualmente que a secagem não foi homogênea, onde a umidade das folhas localizadas no interior do pacote se manteve elevada em relação à umidade das folhas localizadas nas extremidades do leito, que ocorreu devido ao encolhimento do material.

- Martins (2005) fez secagem de folhas de guaco em secador de bandejas, nas temperaturas de 40, 50 e 60°C e verificou que para 60°C a secagem ocorreu de maneira não uniforme. O produto final apresentou elevado gradiente de umidade e descoloração.

Observa-se que problemas de heterogeneidade de umidade na secagem em leitos fixos, não são restritos à secagem de folhas. Foram encontrados na literatura trabalhos reportando este problema na secagem de diversos tipos de materiais biológicos. Por exemplo, na secagem de café em silo com ar ambiente, Jasper, Biaggioni e Ribeiro (2008) verificaram variações nas curvas de secagem para o material localizado em diferentes alturas. No quinto dia de secagem, para a camada que ficava mais perto da entrada de ar, o material possuía 14% (b.u.), a partir do quinto dia, a frente de secagem encontrava-se nas camadas intermediárias, e acima dessas camadas o material ainda possuía umidade elevada. Eichol e Peres (2007) secaram o milho, em leito fixo, em  $47 \pm 3^\circ\text{C}$ , com altura de 70 cm e diâmetro de 2,7 m. Foi constatado que as curvas de secagem foram diferentes em relação às alturas avaliadas. Para a altura mais próxima da entrada do ar de secagem, a redução da umidade foi maior nas primeiras horas e na parte superior, ocorreram acréscimos de umidade transferida pelas camadas inferiores. Para secagem de materiais como o milho, após um longo tempo para uniformizar as umidades, pode ser prejudicial à qualidade do material, ocorrendo o trincamento e super secagem das sementes localizadas mais próximas à entrada do ar.

Problemas de não-uniformidade da umidade podem ser minimizados utilizando-se configurações de secadores que permitam o contato uniforme entre o ar e o material, o que pode ser obtido com uma movimentação efetiva deste. Com este propósito, sugere-se o uso de secadores cilíndricos com movimento rotativo, ou de leitos fluidizados.

Uma das configurações utilizadas a fim de uniformizar o contato sólido-fluido, é o leito fluidizado. No processo de fluidização, o leito inicialmente fixo de partículas sólidas oferece uma resistência proporcional à velocidade de escoamento do fluido que percola o leito no sentido ascendente, e à medida que é aumentada a vazão de escoamento de ar, aumenta-se também a força de arraste exercida pelo fluido sobre as partículas. Quando esta força se torna igual ao peso das partículas, estas ficam suspensas pelo fluido, e o leito se torna então fluidizado (DALEFFE; FREIRE, 2004). No entanto, Lima (2013) mostrou que as folhas são materiais que

não fluidizam facilmente. Durante a secagem houve formação de canais preferenciais de escoamento do ar, e não ocorreu a fluidização. Logo, a secagem não foi homogênea. Buchailot, Caffin e Bhandari (2009) quando utilizaram o leito fluidizado na secagem de folhas de limão murta, em seus estudos observaram que a fluidização não foi eficiente devido às dimensões características das folhas. Portanto, a fluidização não é uma técnica que possa ser recomendada de forma generalizada para a secagem de folhas.

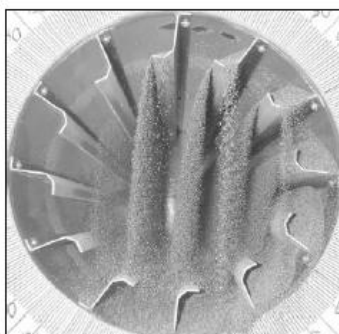
De acordo com Lima (2013), o uso de vibrações mecânicas no leito fluidizado é recomendado com a intenção de proporcionar uma mistura mais uniforme entre as fases sólida e fluida para materiais que tendem a aglomerar, como é o caso das folhas. A autora constatou que a utilização de vibração em um leito fluidizado não melhorou de forma significativa a qualidade da fluidização, mas minimizou a ocorrência de canais preferenciais de escoamento de ar e regiões de vazios, e movimentou as folhas de forma mais efetiva. Assim, melhorou o contato entre o ar e as folhas, resultando numa secagem uniforme do material.

O secador de tambor rotativo é considerado adequado para promover um bom contato e mistura entre as fases, no caso da secagem de folhas, podendo se adequar para espécies de folhas mais resistentes. Este equipamento é constituído de um casco cilíndrico, onde o seu comprimento varia de 4 a 10 vezes o seu diâmetro, levemente inclinado em relação à horizontal, e equipado com suspensores, o qual gira em torno do seu eixo longitudinal. Os suspensores são os responsáveis por promover o cascadeamento do material. No cascadeamento, o sólido úmido é alimentado até a parte mais elevada do tambor e cai, e enquanto o tambor permanece em rotação, o sólido que se encontra no fundo do tambor é coletado e transportado até a parte superior, ocorrendo então, a cascata de sólidos. O material percorre o secador em movimentos giratórios de uma extremidade para a outra por ação da gravidade, enquanto o ar escoar na direção longitudinal, e atravessa esta cascata, promovendo a secagem. A Figura 2.2, ilustra o cascadeamento do material.

Sua classificação, de acordo com as condições operacionais pode ser de contato direto ou indireto, em relação à transferência de calor, e normalmente, estes secadores operam em regime contínuo. O escoamento pode ser concorrente, utilizado no caso de materiais termossensíveis, ou contracorrente, onde é necessária uma secagem rápida. Entretanto, para outros materiais, é possível

aproveitar o aumento da eficiência térmica com o uso do escoamento em contracorrente (BAKER, 1983).

Figura 2.2: Cascadeamento do material



Fonte: REVOL *et al.* (2001)

São amplamente utilizados na secagem, pois podem ser aplicados a materiais variados, como diversas variedades de grãos, e possuem uma configuração que permite bom contato entre a fase sólida e fluida, e assim, facilitam a secagem homogênea. Seu projeto possui certa complexidade, pois necessita da determinação de muitas variáveis como: taxas de alimentação do sólido e do ar, temperaturas do gás e do material a ser seco, diâmetro, comprimento, inclinação e rotação do tambor, capacidade e número de suspensores no secador (ARRUDA, 2008; BICALHO *et al.*, 2010). O trabalho de Tarhan *et al.* (2010) é um exemplo de secagem de folhas em tambor rotativo. Usando um secador com 95 cm de diâmetro e 130 cm de comprimento, o autor realizou a secagem de folhas de hortelã-pimenta a 40°C com picos de 60°C, e concluiu que a secagem foi eficiente e não prejudicou o conteúdo de mentol presente no óleo essencial.

Logo, pela revisão apresentada, constata-se que há uma necessidade de se investigar configurações de secagem que permitam uma boa movimentação do material, de forma a melhorar o contato entre o ar aquecido e as folhas, bem como estudar os efeitos da secagem sobre a qualidade do produto, o que motivou a realização deste trabalho. Como material para estudo neste secador, foram escolhidas as folhas da espécie *Corymbia citriodora*, a qual está descrita a seguir.

## 2.2. A espécie *Corymbia citriodora*

Baseados em características morfológicas e moleculares, o gênero *Eucalyptus* foi reclassificado. Hill e Johnson (1995) citados por Nunes (2009) propuseram uma nova classificação, formando um novo gênero denominado *Corymbia*, no qual foram incluídas 113 espécies, entre elas o *Eucalyptus citriodora* Hook classificada como *Corymbia citriodora* (Hook) K.D. Hill & L.A.S. Johnson.

O *Corymbia citriodora* tem origem na Austrália e ocorre principalmente no Sul e no Norte do estado de Queensland. Foi introduzido no Brasil juntamente com outras espécies de eucalipto, com o objetivo inicial de produção de madeira. É uma árvore de porte médio, que ocorre em vários tipos de solo, em florestas abertas com presença de outras espécies, sendo facilmente diferenciada pelo forte cheiro do citronelal de suas folhas (VITTI; BRITO, 2003; RIZZINI, 1985).

Está adaptado a diversas regiões do país, sendo amplamente cultivado para a produção de madeira (VITTI; BRITO, 1999). Sua plantação tem maior concentração nos estados de São Paulo e Minas Gerais, com uma área de plantio estimada em 85.000 ha, sendo que em São Paulo sua área plantada é de 10.060 ha (NUNES, 2009).

Os principais componentes químicos do óleo essencial do *Corymbia citriodora* e algumas propriedades físico-químicas estão apresentados na Tabela 1.

Tabela 1: Principais componentes químicos do óleo essencial do *Corymbia citriodora* e suas propriedades físico-químicas.

	Citronelal	Citronelol	Isopulegol
Fórmula molecular	C <sub>10</sub> H <sub>18</sub> O	C <sub>10</sub> H <sub>20</sub> O	C <sub>10</sub> H <sub>18</sub> O
Massa molecular	154,25	156,27	154,25
Ponto de ebulição	206,5 °C	221,5°C	220°C
Ponto de fulgor	78°C	79°C	78°C
Densidade (g/ml)	0,856	0,857	0,911
Concentrações típicas	65-80%	4,0-5,0%	2,3-2,5%

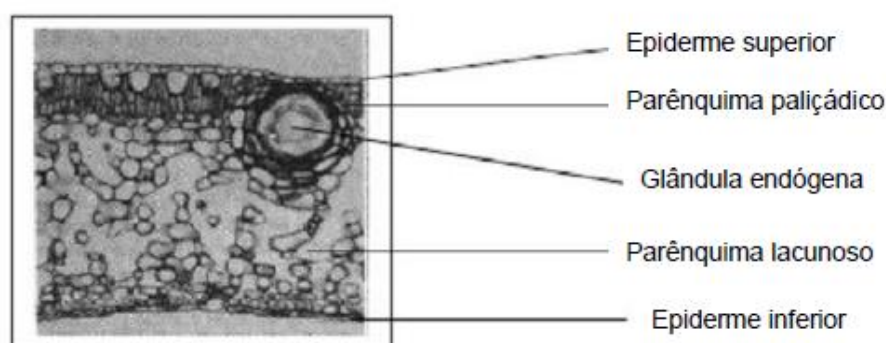
Fonte: Adaptado de Braga (2002)

No Brasil, esta espécie apresenta como componente principal do óleo o citronelal, com teor que varia entre 65-85 %. É uma das espécies mais exploradas para a produção de óleos essenciais utilizados em indústrias de perfumaria, sendo

empregado principalmente nos produtos de limpeza, como sabões e desinfetantes. Além desta, outras espécies muito utilizadas são o *Eucalyptus globulos*, produtora de óleo para fins medicinais, que tem como componente principal o cineol com teor aproximado de 70% e o *Eucalyptus staigeriana* que é rico em citral (VITTI; BRITO, 2003; BIZZO; HOVELL; REZENDE, 2009).

De acordo com Vitti e Brito (2003) o óleo essencial proveniente de eucalipto, geralmente é produzido por estruturas secretoras especializadas, tais como pêlos glandulares, células parenquimáticas diferenciadas, canais oleíferos ou em bolsas específicas. A secreção é formada em glândulas endógenas (Figura 2.2), que eventualmente se rompem e liberam substâncias na cavidade resultante do rompimento das glândulas (CASTRO *et al.*, 2008).

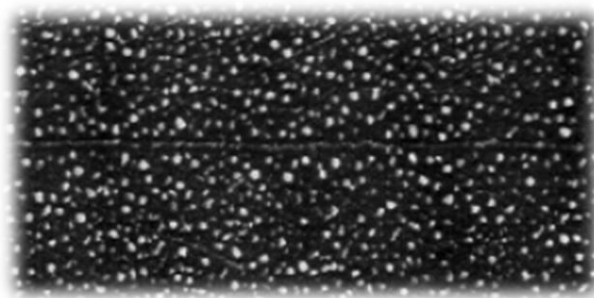
Figura 2.3: Esquema de corte transversal de uma folha



Fonte: Adaptado de BRUM (2010)

Em algumas espécies estas glândulas podem ser visualizadas como pequenos pontos translúcidos quando a folha é observada contra a luz (Figura 2.3). Estas estruturas podem estar localizadas em partes específicas ou em toda a planta. Dessa forma, pode-se encontrar o óleo essencial de diferentes partes de uma planta, tais como: parte aérea (menta), nas flores (rosa e jasmim), folhas (eucaliptos e capim limão), nos frutos (laranja e limão), na madeira (sândalo e pau-rosa), nas cascas do caule (canela), nas raízes (vetiver), nos rizomas (gengibre) e nas sementes (noz moscada). Os óleos obtidos de diferentes partes de uma mesma planta podem apresentar composição química, características físico-químicas e odores diferentes (VITTI; BRITO, 2003).

Figura 2.4: Folha de *Corymbia citriodora* observada contra a luz



Fonte: BRAGA (2002)

As folhas do gênero *Eucalyptus* passam por 3 fases: juvenil, em que são muito diferentes das que existem na planta adulta; intermediária, onde exibem transições da fase juvenil para a fase adulta e a adulta, quando as folhas apresentam-se em estado definitivo. As árvores da espécie *citriodora* geralmente possuem dimensões de 24-40m X 60-120 cm, fuste retilíneo e copa rala. Suas folhas podem apresentar formas lanceoladas, muito estreitas, falcadas e acuminadas, com dimensões de até 10-30 X 1-1,25 cm e nervuras regulares de 45-60°. As folhas da planta jovem são lanceoladas ou estreitamente oval-lanceoladas, peltadas, repletas de pêlos glandulares (RIZZINI, 1985).

Os óleos essenciais de eucalipto geralmente são extraídos das folhas adultas e juvenis, junto com os ramos terminais, por meio de um sistema de arraste a vapor d'água. Os melhores óleos são obtidos nas épocas do ano com pouca umidade e de folhas já adultas (MOCHI, 2005).

Bizzo, Hovell e Rezende (2009) e Vieira (2004) afirmam que o rendimento do óleo de *Corymbia citriodora* pode variar de 1,0 a 1,6% e de acordo com Barros e Yabiku (1995), o rendimento pode variar de 2,0 a 3,0% em base úmida. Para Vitti e Brito o rendimento está entre 0,5 e 2,0%. Sua densidade relativa a 20° C está entre 0,858 – 0,877 g/mL (BARROS; YAKIBU, 1995; VITTI; BRITO, 2003).

### 2.3. Óleos essenciais

Os óleos essenciais são líquidos de aparência oleosa à temperatura ambiente. São também conhecidos como óleos voláteis, por apresentarem volatilidade; óleos etéreos, por serem solúveis em solventes orgânicos apolares (éter); ou essências, devido à presença de um aroma agradável e intenso da maioria



de seus representantes. São definidos pela International Standard Organization (ISO) como produtos obtidos de partes de plantas, através da destilação por arraste a vapor, e produtos obtidos por pressão mecânica dos pericarpos de frutos cítricos (VITTI; BRITO, 2003).

Suas propriedades químicas e físicas podem se modificar na presença de ar, luz, calor, umidade e metais. Seu aroma pode se modificar pela ação de ar e luz, tornando-se menos agradável e a cor também pode se tornar mais escura, a fluidez diminuir, produzir reação ácida e por vezes, chegar a resinificar-se, alterando-se profundamente. O óleo de copaíba sofre resinificação com o passar do tempo (LA CRUZ, 2010).

A essência é uma mistura heterogênea e complexa, que possui de 50 a 300 constituintes voláteis distribuídos entre: terpenóides (mono e sesquiterpenos), lignóides (derivados alil e propenil), hidrocarbonetos, fenóis, éteres, ésteres, aldeídos, cetonas, álcoois e ácidos (BRAGA, 2002). Entre os constituintes químicos, alguns se apresentam em maior concentração e são conhecidos como principais, e aqueles que se apresentam em baixas concentrações são conhecidos como componente traço. O componente principal é o constituinte desejado e o motivo pelo qual ocorre a exploração econômica das plantas produtoras de óleo (VITTI; BRITO, 2003).

Segundo La Cruz (2010), os óleos essenciais exercem função ecológica na espécie que o produz, agindo como inibidor de outras espécies vegetais que venham a competir com o solo, luz e água; na proteção contra predadores; na função de polinizadores; na produção contra perda de água entre outros. E ainda podem estar relacionados à defesa contra o frio (VITTI; BRITO, 2003).

São utilizados principalmente como aromas, fragrâncias, fixadores de fragrâncias, em composições farmacêuticas e orais, e comercializados na sua forma bruta ou beneficiada, fornecendo substâncias purificadas, como o limoneno, citral, citronelal, eugenol, mentol e safrol. Portanto, possuem grande aplicação na perfumaria, cosmética, alimentos e como coadjuvantes em medicamentos (BIZZO; HOVELL; REZENDE, 2009).

De acordo com Vitti e Brito (2003) e Brum (2010) existem vários fatores que influenciam na produção e qualidade do óleo essencial, sendo os principais: variabilidade genética, idade da folha, condições ambientais, manejo florestal,

processos de extração e análise do óleo. O rendimento em óleo é afetado por condições ecofisiológicas, e as melhores estações para a coleta de folhas e extração de óleo são inverno e primavera. Porém, em um trabalho citado por Gasparin (2012), para a espécie de *Mentha piperita*, a melhor estação do ano para a produção do óleo essencial é o verão, devido a uma menor adaptação dessa espécie a temperaturas baixas.

A variabilidade genética é considerada um parâmetro muito importante para a realização de trabalhos de melhoramento. É um fator muito estudado e o que apresenta o maior número de resultados, em se tratando de óleos essenciais. Outro fator que afeta o teor de óleo é a idade da folha. A média da vida normal das folhas é de aproximadamente 18 meses, tempo sujeito à variação, existindo folhas em que os óleos permanecem somente poucos meses, como em espécies de crescimento rápido, ou por 3 a 4 anos, no caso de espécies de crescimento mais lento. Franich (1982) citado por Vitti e Brito (2003), relata que o rendimento de óleo essencial de *E. nitens* de folhas juvenis foi de 1,0% e de folhas adultas foi de 2,5%, enquanto que a composição química foi semelhante em ambos os casos.

Condições ambientais, como temperatura, umidade relativa, tempo de exposição ao sol e regime de ventos, exercem influência direta na segregação do óleo essencial da superfície da folha. Recomenda-se que a coleta das folhas seja pela manhã ou à noite, diminuindo o tempo de exposição ao sol. Outro fator é o manejo florestal: o corte das árvores, o sistema de rotação de plantio, a indução do crescimento e o tempo de espera para o corte influenciam na formação da planta, conseqüentemente na composição química da madeira e das folhas, alterando as propriedades do óleo essencial.

A análise química do óleo essencial extraído pode ser realizada por vários métodos. A cromatografia em fase gasosa (CG) é um método simples que separa e quantifica seus componentes químicos. Pela característica de volatilização do óleo, a amostra é solubilizada em solventes, antes de ser injetada no cromatógrafo. Para obter mais segurança na identificação dos picos individuais e controlar a pureza de um pico cromatográfico, recomenda-se analisar qualquer óleo volátil também por espectrometria de massas. Esse método fornece o espectro de massa de cada composto, além da separação dos componentes. O espectro de massas geralmente indica a massa molecular, que informa sobre a classe da

substância, e o padrão de fragmentação, que pode ser comparado com aqueles constantes do banco de dados de espectros de massas (SILVA, 2005).

Para o seu acondicionamento, recomenda-se armazená-los em frascos de cor âmbar ou azul cobalto. A observação minuciosa da cor, odor, variação de preço, procedência e idoneidade do fornecedor, data de fabricação e validade são de suma importância (GASPARIN, 2012).

### **2.3.1. Mercado de óleos essenciais**

Os óleos essenciais vêm apresentando um valor relativamente estável ao longo dos anos, e devido à existência da agricultura primária que é menos exigente, a sua produção é muito explorada em regiões pouco desenvolvidas como a Guatemala, Índia, China, Egito, Indonésia, Sri Lanka, Turquia e o Brasil, entre outros, que exportam as essências. Os países desenvolvidos importam essa matéria-prima barata e agregam valor através da purificação, destilação, preparação de derivados, isolamento de constituintes e modificações químicas (CRAVEIRO; QUEIROZ, 1992).

A base de dados americana COMTRADE (United Nations Commodity Trade Statistics Database) citada por Bizzo, Hovell e Rezende (2009), diz que os maiores consumidores de óleos essenciais no mundo são os EUA (40%), a União Européia (30%), a França – líder em exportações e o Japão (7%), ao lado do Reino Unido, Alemanha, Suíça, Irlanda, China, Cingapura e Espanha. O mercado mundial gira em torno de US\$ 15 milhões/ano, com um crescimento de aproximadamente 11% ao ano.

Segundo Prins, Vieira e Freitas (2010) as indústrias de aromas e fragrâncias representam um mercado de US\$ 18 bilhões por ano e o comércio internacional apresenta aumento médio de 10% ao ano.

O Brasil tem destaque na produção mundial de óleos essenciais, mas sofre com problemas no setor de qualidade, representatividade nacional e baixos investimentos governamentais (BIZZO; HOVELL; REZENDE, 2009).

### **2.3.2. Métodos de extração de óleo essencial**

Existem vários métodos de extração dos óleos essenciais e de acordo com o método empregado, suas propriedades químicas podem ser alteradas. O calor e a pressão utilizados na extração, por exemplo, podem quebrar moléculas de

um princípio ativo em produtos de menor eficácia e interferir na qualidade final do óleo (BRUM, 2010). O método varia conforme a localização do óleo na planta e sua forma de utilização (medicinal, alimentício ou cosmético) (LA CRUZ, 2010).

Alguns dos métodos utilizados para a extração de óleo estão descritos a seguir:

- Extração por arraste com vapor d'água: na extração por arraste com vapor d'água, o material vegetal geralmente fresco e cortado em pedaços, é disposto em um recipiente fechado e submetido a uma corrente de vapor d'água. A essência é arrastada e posteriormente condensada, coletada e separada da fração aquosa. Esta técnica é muito utilizada para essências fluidas, especialmente para perfumaria. É um método utilizado a nível industrial, devido ao seu alto rendimento comparado aos métodos mais eficientes, a pureza do óleo obtido e por não necessitar de tecnologia sofisticada (BRAGA, 2002).

- Extração com vapor ou coação: Realizada através do método Clevenger, a matéria-prima é posta em contato direto com a água em ebulição, onde o vapor formado arrasta os compostos voláteis. A mistura de vapor e óleo passa por um condensador, e após a condensação, os compostos insolúveis separam-se da água por decantação. O material pode estar completamente imerso ou não, em função de sua densidade e quantidade utilizada em cada batelada. Se a água destilada retorna ao sistema, este método recebe o nome de coação (BRAGA, 2002; BRUM 2010).

- Pressão mecânica: neste método o material vegetal é pressionado mecanicamente para liberar o óleo e este é coletado e filtrado. Este método é utilizado para extração de óleos essenciais de frutos cítricos (LA CRUZ, 2010; BRAGA, 2002).

- Extração com fluido supercrítico: o material vegetal cominuído (cortado, triturado ou moído) é empacotado em uma câmara de aço inoxidável e através da amostra circula um fluido no estado supercrítico (CO<sub>2</sub>, por exemplo). As essências são assim solubilizadas e arrastadas, e o fluido supercrítico que atua como solvente extrator é eliminado por descompressão progressiva até alcançar a temperatura e pressão ambiente, e finalmente obtém-se uma essência cujo grau de pureza depende das condições de extração (BRAGA, 2002). É um processo livre de resíduos tóxicos, que previne a degradação térmica dos extratos quando utiliza baixas temperaturas. Tem possibilidade de fácil recuperação do solvente

supercrítico após o processo de extração, apenas pelo ajuste de pressão e/ou temperatura, podendo ser continuamente reciclado (BRUM, 2010). Porém, apresenta desvantagens por necessitar de bombas de alta pressão e sistemas de extração resistente a altas pressões, que são equipamentos de alto custo (BRAGA, 2002).

- Extração com solventes orgânicos: utilizam vários solventes, como alcoóis metílico, etílico e propílico, hexano, clorofórmio, acetato de etila, acetona, água e éter de petróleo (MEZZOMO, 2008). Após a extração, o solvente é removido por evaporação ou destilação, deixando um extrato denso e resinoso (FILIPPIS, 2001).

### 3. MATERIAIS E MÉTODOS

Neste capítulo estão descritos os materiais, equipamentos e procedimentos experimentais utilizados para o desenvolvimento deste trabalho.

#### 3.1. Materiais

Foram utilizadas folhas de *Corymbia citriodora* coletadas nas redondezas no Cerrado da Universidade Federal de São Carlos, localizado na cidade de São Carlos.

Após a coleta, as folhas foram tiradas dos galhos e devido à grande variação de tamanho dependendo da sua posição nos galhos, foram descartadas as folhas de comprimentos menores que 10 cm, para a realização das etapas de caracterização e secagem, mas procurando preservar a heterogeneidade que é peculiar de sua espécie, como mostra a Figura 3.1.

Figura 3.1: Imagem das folhas de diferentes tamanhos e formatos



Fonte: Acervo pessoal

#### 3.2. Caracterização da folha *in natura*

As folhas foram caracterizadas medindo-se sua espessura média, área projetada, perímetro projetado, comprimento médio, densidade aparente, conteúdo de umidade inicial, teor de óleo essencial e densidade *bulk*.

##### 3.2.1. Dimensões características

A espessura da folha foi medida por um paquímetro digital Caliper de 0,01 mm de precisão, em 3 posições diferentes da superfície de 20 folhas, conforme

mostra a Figura 3.2. A partir dos dados obtidos, calculou-se a média aritmética das 3 medidas.

Figura 3.2: Esquema de medição da espessura da folha nas posições demarcadas pelos círculos pretos



Fonte: Acervo pessoal

As dimensões características de área projetada, perímetro projetado e comprimento médio, foram obtidas através da técnica de análise de imagens para 90 folhas, utilizando o software Image-Pro Plus 6, adotando-se o valor médio das medidas.

### 3.2.2. Massa específica aparente da folha

A massa específica aparente ( $\rho_p$ ) das folhas foi determinada pela técnica de picnometria líquida usando o tolueno, com medidas em triplicata. A massa específica foi calculada pela equação:

$$\rho_p = \frac{m_p}{V_p} \quad (1)$$

$m_p$  = massa de folhas (g)

$V_p$  = volume de folhas ocupadas no picnômetro (ml)

### 3.2.3. Umidade inicial em base úmida (b.u.)

A umidade inicial das folhas foi obtida pelo método gravimétrico, mantendo-se as amostras em estufa a vácuo, com temperatura regulada de 70°C, até a massa constante. O conteúdo de umidade b.u. ( $U_{bu}$ ) foi calculado pela equação:

$$U_{b.u.} = \frac{M_{H_2O}}{M_t} \quad (2)$$

$M_{H_2O}$  = massa de água (g)

$M_t$  = massa total de folhas (g)

### 3.2.4. Teor de óleo essencial

Para a extração do óleo essencial, as folhas foram colhidas sempre no período da manhã. As folhas foram picadas e colocadas em aparelho Clevenger (Marconi, MA 553), no qual se iniciou o processo de extração após a condensação do hidrolato (óleo + água), e o tempo de destilação foi de 2h. Em seguida, o óleo foi separado da água e pesado em balança semi-analítica Gehaka (BK 400, precisão de 0,001g). O teor de óleo essencial ( $R_{bu}$ ) foi obtido para as folhas *in natura* calculado pela equação (3) a fim de obter uma comparação deste com os encontrados na literatura:

$$R_{b.u.} = \frac{M_o}{M_f} \cdot 100 \quad (3)$$

No qual,  $R_{bu}$  é o teor de óleo em base úmida, ou seja, a massa de folhas  $M_f$  é a massa total, considerando o conteúdo de umidade inicial (b.u.)

$M_o$ =massa de óleo (g)

$M_f$  = massa seca + massa de água + massa de óleo (g)

### 3.2.5. Densidade *bulk*

A densidade *bulk* ( $\rho_b$ ) foi determinada, em triplicata, medindo-se o volume ocupado por uma massa conhecida de folhas, sendo esta a razão da massa de partículas ( $m_p$ ) e o volume do leito ( $V_b$ ), calculada segundo a equação:

$$\rho_b = \frac{m_p}{V_b} \quad (4)$$

## 3.3. Secagem

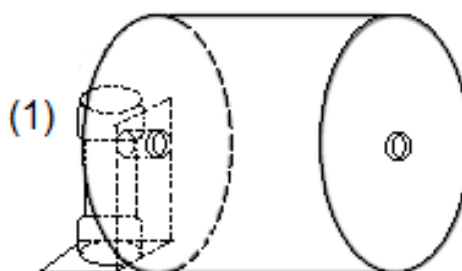
A concepção do secador tipo cesto rotativo foi inspirada na configuração do secador de tambor rotativo, tendo em comum com este equipamento o formato e o movimento de rotação. O seu desenvolvimento está descrito a seguir.



### 3.3.1. Construção do Secador Tipo Cesto Rotativo

O secador convectivo consiste de um cesto cilíndrico (Figura 3.3) de 20 cm de diâmetro e 18 cm de comprimento, o qual possui um motor de 1/15 hp com sistema de redução para operar em 15 RPM acoplado à lateral esquerda do cesto para permitir a sua rotação em torno do eixo longitudinal e assim movimentar o material em seu interior durante a secagem.

Figura 3.3: Esquema do cesto rotativo



Fonte: Acervo pessoal

(1) - motor de 1/15 hp acoplado ao cesto

O material utilizado para a confecção do cesto é composto de 2 telas perfuradas de aço inoxidável, sendo uma tela de malha de 2 x 2 mm e uma tela de maior resistência mecânica, com orifícios de 2 cm de diâmetro, que confere a estrutura principal do cesto, como mostra a Figura 3.4.

Figura 3.4: Imagem das telas perfuradas



Fonte: Acervo pessoal

As laterais do cesto são feitas de telas de ferro perfuradas, de orifícios de 0,6 cm de diâmetro, no qual uma das laterais é fixada por 4 parafusos, dispostos em distâncias iguais entre si. Esta lateral pode ser removida, a qual permite que seja inserido e/ou retirado o material do seu interior. O cesto é inserido lateralmente em um duto de escoamento de ar. O ar é alimentado a partir deste duto e atravessa as paredes perfuradas na direção perpendicular ao eixo longitudinal do cesto, como mostra a Figura 3.5. Em uma das extremidades do cesto é fixado um apoio no qual foi instalado um motor elétrico (Diacti, 1/15 HP) acoplado ao cesto, como ilustra a Figura 3.3. Ao ser acionado, o motor permite a rotação do cesto no sentido horário, sendo que a velocidade pode ser ajustada por meio de um controlador da marca Diacti.

Figura 3.5: Imagem do cesto inserido no duto de escoamento de ar em vista lateral direita

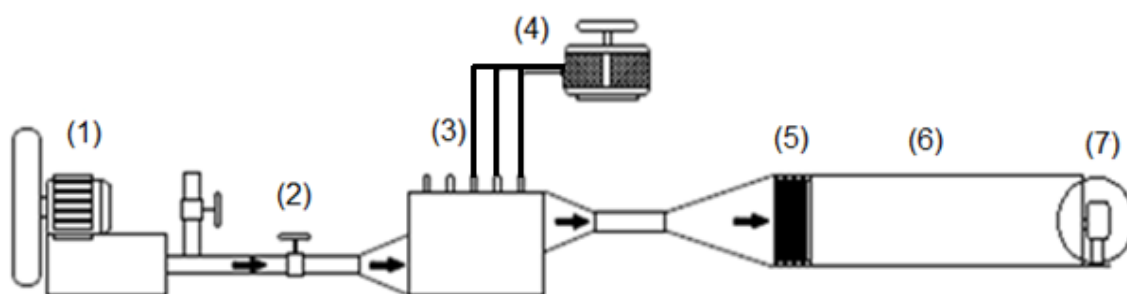


Fonte: Acervo pessoal

A tubulação que direciona o ar alimentado no cesto tem dimensões de 20 cm de largura por 20 cm de altura.

O ar é fornecido por um soprador axial Ibram (modelo VC 3560, 3469 rpm, 4 CV), e uma válvula gaveta ajusta a vazão de ar, conforme ilustrado na Figura 3.6, que mostra a unidade de secagem com todos os seus componentes.

Figura 3.6: Vista lateral da linha de fornecimento de ar e secador tipo cesto rotativo



Fonte: Adaptado de Costa (2013)

Legenda: (1) Soprador, (2) Regulagem de vazão, (3) Aquecedor, (4) Variador de tensão, (5) Sistema de homogeneização do ar, (6) Duto de escoamento de ar e (7) Cesto.

O aquecimento do ar é feito por um conjunto de 3 resistências elétricas de 1000W ligado em um variac Varivolt, que permite ajustar a potência de saída, e assim, manter a temperatura do ar no valor desejado.

Como as folhas de eucalipto são longas, estas foram dispostas no interior do cesto com o comprimento no sentido longitudinal, o que permitiu melhor acomodação das folhas durante a rotação, conforme mostra a Figura 3.7.

Figura 3.7: Imagem das folhas dispostas no cesto



Fonte Acervo pessoal

### 3.3.2. Determinação das variáveis de operação

As condições de secagem podem ser alteradas variando-se: a temperatura do ar, a velocidade do ar e a velocidade de rotação do cesto. Como o secador é um equipamento novo e as condições de operação eram desconhecidas, a escolha dos valores utilizados na avaliação da secagem foi baseada em algumas referências de trabalhos anteriores. Também foram feitos alguns testes preliminares, de forma a avaliar possíveis condições de operação.

Para a escolha da velocidade do ar foi adotado um valor próximo aos usualmente adotados para a secagem de folhas, como por exemplo, Erbay e Icier (2009) que utilizaram a faixa de 0,5 à 1,5 m/s para as folhas de oliveira em secador de esteira, Radunz *et al.* (2003) que secaram folhas de guaco em camada fixa com velocidade do ar de 0,5 m/s e Kaya e Aydin (2009) que utilizaram velocidades do ar entre 0,2 e 0,6 m/s, na secagem em leito fixo de folhas de urtiga. Determinou-se então, uma faixa de velocidade de 0,75 m/s a 2,5 m/s, medida no centro do duto de alimentação de ar, para a avaliação da secagem de folhas de *Corymbia citriodora*.

Para a velocidade de rotação do cesto foram consultados trabalhos desenvolvidos no secador de tambor rotativo. Foi observado na literatura que para o tambor rotativo, as rotações utilizadas são baixas, pois o objetivo é apenas movimentar o material. Por exemplo, Perazzini (2011) trabalhou com rotação de 1 RPM na secagem de resíduos cítricos e Tarhan *et al.* (2010) utilizaram 0,13 RPM na secagem de folhas de hortelã-pimenta. Testou-se então, a menor rotação que o motor acoplado ao cesto permitia sem a necessidade de instalação de um redutor de velocidade, que era de 4 RPM, e adotou-se este valor como o mínimo para operação.

A temperatura do ar de secagem foi escolhida com base em um trabalho anterior realizado com a secagem das folhas de *Corymbia citriodora* (BRAGA, 2002). O autor fez secagem das folhas em leito fixo, utilizando temperaturas 35 à 60°C, sendo que a maior temperatura recomendada para a preservação do citronelal contido no óleo essencial foi de 60°C. Então optou-se por utilizar temperaturas próximas à esta faixa, de 50, 60 e 70°C, nas avaliações da secagem.

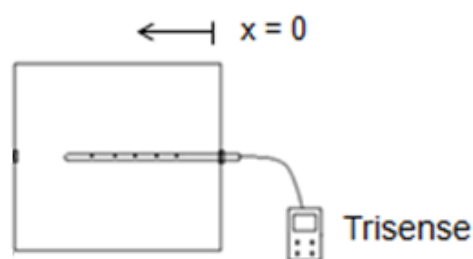
Para a escolha da carga de folhas no secador foram feitos alguns testes preliminares com as folhas *in natura*, observando as condições que forneciam uma boa movimentação do material no interior do cesto. Com base nestes ensaios,

adotou-se 100 g como a carga máxima. Com base na densidade bulk das folhas *in natura*, esta massa correspondia a um volume de 13% do volume útil do cesto.

### 3.3.3. Medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar

Com o propósito de avaliar a uniformidade das condições do ar antes da alimentação no cesto de secagem, foram feitas medidas de temperatura, para 70°C e velocidade do ar, para 0,75 m/s em 6 posições na direção perpendicular ao sentido de escoamento de ar, iniciando as medidas na posição  $x=2,5$  cm, até  $x=15$  cm, com distâncias de 2,5 cm entre si. As medidas foram feitas com um anemômetro presente no Kit Trisense da Cole Parmer Instruments Company (modelo 37000-90), conforme mostra a Figura 3.8. A velocidade do ar não pôde ser medida no interior do cesto enquanto ocorria a sua rotação, então, realizaram-se as medidas de temperatura e de velocidade do ar somente no duto de alimentação.

Figura 3.8: Esquema de medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar em vista frontal da linha



Fonte: Acervo pessoal

### 3.3.4. Procedimento experimental

Para a secagem de folhas no cesto rotativo, as variáveis do processo possíveis de serem manipuladas eram a velocidade e temperatura do ar de secagem, a velocidade de rotação e a massa de folhas inserida em uma batelada.

Com o intuito de determinar quais as variáveis que exercem influência significativa no processo para o intervalo de confiança de 95% ( $p < 0,05$ ), foi construído um planejamento experimental fracionado  $2^{4-1}$ . Os limites de operação das variáveis, selecionados com base nos critérios apresentados no item 3.3.2, estão mostrados na tabela 2.

Com base nos resultados obtidos, foram determinadas as variáveis com influência significativa no processo de secagem, para o nível de significância de 95% ( $p < 0,05$ ), utilizando o software Statistica 7.

Tabela 2: Variáveis e níveis adotados no planejamento  $2^{4-1}$

Variáveis	Níveis		
	-1	0	+1
Temperatura do ar (°C)	50	60	70
Massa de material (g)	30	65	100
Velocidade do ar (m/s)	0,75	1,5	2,25
Rotação do cesto (RPM)	4	6	8

Fonte: Acervo pessoal

Foi escolhido este planejamento experimental, pelo fato de permitir identificar com boa confiabilidade, as principais variáveis que influenciam o processo e minimizar a quantidade de experimentos realizados, totalizando 11 experimentos (com 3 repetições no ponto central). Um planejamento completo de  $2^4$ , totalizaria 16 experimentos sem repetições.

Durante o processo, foi aferida a variação de massa das folhas retirando-as do cesto em intervalos definidos de tempo e pesando-as em uma balança semi-analítica Gehaka (BK 400, precisão de 0,001g) até se atingir a massa constante.

Com os dados da massa em função do tempo foi calculada a umidade adimensional (MR) utilizando as equações:

$$MR = \frac{X_t - X_{eq}}{X_i - X_{eq}} \quad (5)$$

X corresponde ao conteúdo de umidade médio (b.s.) e o subscrito t corresponde ao instante t, i à umidade inicial e eq à umidade de equilíbrio “dinâmico”, ou seja, a que foi obtida no final da secagem.

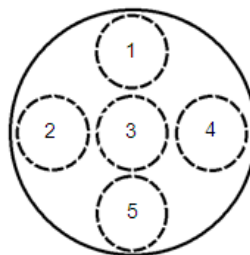
$$X = \frac{M_{H_2O}}{M_s} \quad (6)$$

$M_{H_2O}$  é a massa de água e  $M_s$  é a massa seca de folhas.

### 3.3.5. Avaliação da homogeneidade da secagem

Para testar a eficiência da homogeneidade da umidade final do conjunto de folhas na secagem em cesto rotativo, foi escolhida a condição de 50 e 100 gramas de folhas na temperatura de 70°C e 0,75 m/s de velocidade do ar, em 2 horas de secagem para 100 g e 1,5 horas para 50 g. As massas foram escolhidas com base nos resultados obtidos nos testes do planejamento experimental, e representam duas condições distintas de operação no que se refere ao padrão observado de movimentação do material. As demais condições foram fixadas pela conveniência operacional e foi fixado o tempo de secagem para posterior comparação da umidade final com outras configurações de secagem. Foram coletadas amostras de folhas de 5 posições no interior do cesto, conforme a Figura 3.9.

Figura 3.9: Esquema de coleta de folhas do cesto para avaliação da homogeneidade



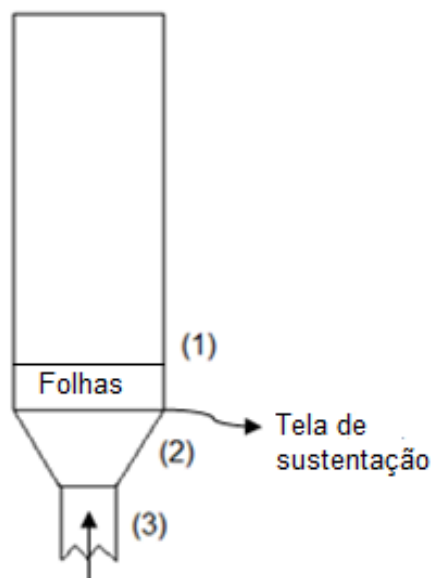
Fonte: Acervo pessoal

A fim de confirmar a eficiência da homogeneidade obtida na secagem realizada no cesto rotativo, foram feitos testes de secagem em outras configurações de secadores, sendo estes: leito fixo com escoamento de ar ascendente, leito fixo com escoamento de ar horizontal, estufa industrial e o secador rotativo convencional. O empacotamento das folhas nos leitos fixos foi realizado de forma aleatória e as diferentes configurações avaliadas estão descritos a seguir:

- Secagem em leito fixo com escoamento de ar ascendente em 70°C e velocidade do ar de 0,75 m/s

A Figura 3.10 ilustra a configuração usada para a secagem com escoamento de ar ascendente:

Figura 3.10: Leito fixo com escoamento de ar ascendente

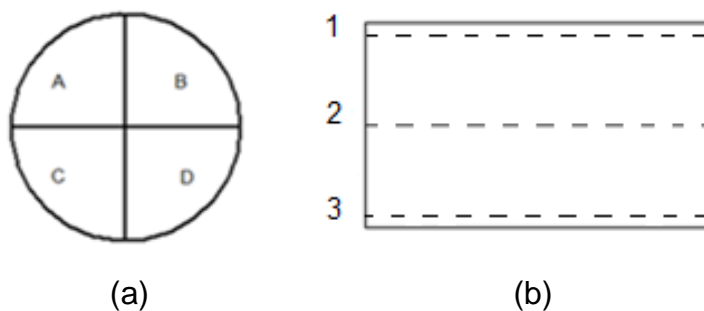


Fonte: Acervo pessoal

Legenda: (1) Câmara de secagem, (2) Sistema de homogeneização do ar, (3) Duto de escoamento do ar.

A câmara de secagem possui 30 cm de diâmetro e 100 cm de altura, no qual foi utilizada uma camada de 7 cm de folhas. A altura da camada de folhas foi escolhida, de modo que fosse possível coletar as amostras em 3 posições da camada. Foram coletadas amostras de 4 posições em cada seção transversal (A,B,C e D), conforme a figura 3.11(a) e em 3 posições, Figura 3.11(b), sendo uma amostra tirada do topo da camada (1), uma do meio (2) e uma da base da camada de folhas (3), correspondentes às alturas 7 cm, 3,5 cm e 0 cm respectivamente, para a determinação de umidade (b.u.) pelo método gravimétrico em estufa a 105°C.

Figura 3.11: Esquema de coleta de folhas: A, B, C, e D correspondem às amostras coletadas no sentido radial (a) e 1, 2 e 3 à altura do leito (b).



Fonte: Acervo pessoal

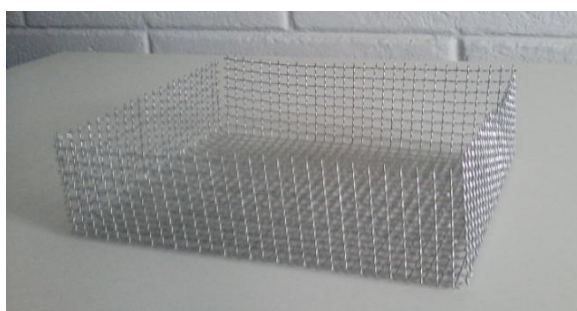


A seguir estão descritas outras configurações de secadores, nos quais a coleta de folhas em diferentes alturas está representada pela Figura 3.11(b).

- Leito fixo com escoamento horizontal de ar paralelo ao leito em 70°C e velocidades do ar de 0,75 e 1,5 m/s:

Para este método foi utilizada uma bandeja de tela perfurada (Figura 3.12) com malha de 6 x 6 mm, e dimensões de 15 x 25 x 5 cm, no interior da qual foi utilizada uma camada de 4 cm de folhas.

Figura 3.12: Imagem da bandeja perfurada



Fonte: Acervo pessoal

A bandeja foi inserida no interior do mesmo duto de escoamento de ar utilizado na unidade de secagem do secador tipo cesto rotativo (Figura 3.12), sendo posicionada no centro do duto. As dimensões da bandeja e altura da camada de folha foram limitadas pelas dimensões do túnel. Nesta configuração, o ar escoava na superfície da bandeja, na direção horizontal.

Figura 3.13: Esquema de secagem das folhas na bandeja inserida no interior do duto de escoamento de ar (vista lateral)



Fonte: Acervo pessoal

Para a determinação da umidade final, foram retiradas amostras de 3 posições na altura da bandeja, conforme a Figura 3.11(b), sendo as posições 1, 2 e 3 correspondentes às alturas de 0, 2 e 4 cm, respectivamente.

- Secagem em estufa tipo industrial

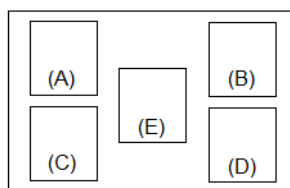
A estufa, com renovação e circulação de ar tem capacidade de volume de  $0,42 \text{ m}^3$ , temperatura de operação máxima de  $200 \text{ }^\circ\text{C}$ , contém 6 prateleiras com dimensões  $(80 \times 56 \times 15,5) \text{ cm}^3$  e permite a secagem em escala comercial. Em estufas de grandes dimensões, a troca térmica com o ambiente é significativa, o que afeta as correntes de convecção natural no interior da estufa e pode resultar em uma distribuição não-uniforme de temperaturas, e conseqüentemente, em secagem não uniforme. Para verificar se isto ocorria na estufa utilizada, foram feitos testes preliminares em que a uniformidade da temperatura foi avaliada indiretamente com base na comparação entre taxas de evaporação de água observadas em diferentes posições da estufa. Golveia *et al.*, (2003), relatam que os secadores de bandeja podem acarretar inconveniências, uma vez que a distribuição de ar é heterogênea, resultando em produtos processados de forma desigual, no qual é preciso mudar constantemente os vagonetes de lugar e trocar as bandejas de posição.

Foram utilizadas provetas de 25 mL distribuídas em diferentes prateleiras dentro da estufa e em diferentes posições de uma mesma prateleira. As provetas preenchidas com água foram deixadas por aproximadamente 8h em temperatura de  $70^\circ\text{C}$ , para 2 repetições e em seguida, foram calculadas as taxas de evaporação. As provetas foram localizadas nas prateleiras como mostra a Figura 3.14.

Para a secagem das folhas na estufa foram construídas 5 bandejas de tela perfurada com malha de  $6 \times 6 \text{ mm}$ , com alturas de 5 cm, e  $25 \times 20 \text{ cm}$  de comprimento e largura, respectivamente. A altura de 5 cm foi a mesma utilizada na secagem no duto de escoamento do ar, e mantinha um espaço para circulação do ar entre as prateleiras, cuja distância de separação era de 15,5 cm. Utilizou-se uma camada de 4 cm de folhas, e as bandejas foram dispostas em 5 locais da prateleira (3), nas mesmas posições utilizadas para as provetas. A Figura 3.15 mostra a estufa industrial.

Escolheu-se uma prateleira próxima ao centro da estufa com base nos testes preliminares. Ao final da secagem, foram retiradas amostras de 3 posições na altura da bandeja, sendo das posições 1 = 0 cm, 2 = 2 cm e 3 = 4 cm de altura da bandeja, conforme a Figura 3.11(b) para determinação de umidade final pelo método gravimétrico.

Figura 3.14: Esquema de localização das provetas e bandejas na prateleira 3 da estufa



Fonte: Acervo pessoal

Figura 3.15: Estufa com renovação e circulação de ar MA 037

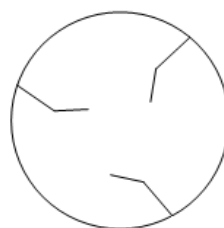


Fonte: Acervo pessoal

- Secador rotativo convencional:

O secador rotativo possui dimensões de 10 cm de diâmetro e comprimento de 80 cm. No interior do tambor estão dispostos 3 suspensores angulares. A Figura 3.16 ilustra um esquema de geometria dos suspensores.

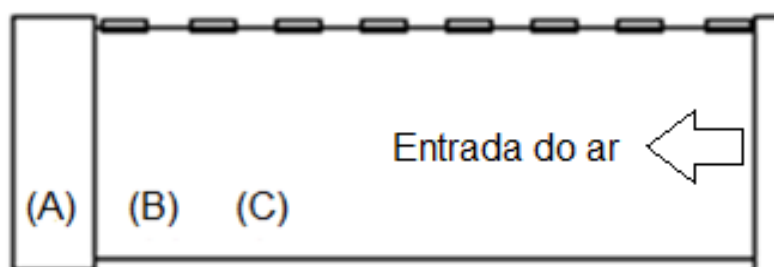
Figura 3.16: Representação esquemática de suspensores angulares



Fonte: Acervo pessoal

Foram utilizados 150 gramas de folhas, totalizando aproximadamente 4% do volume total do secador, em 2 h de secagem. A secagem foi realizada na temperatura de 70°C e baixa velocidade do ar, de 0,6 m/s, a fim de evitar que as folhas fossem arrastadas durante o processo, com rotação de 2 RPM do tambor. O tambor foi mantido sem inclinação, tornando o processo batelada. Em seguida, foram retiradas amostras de diferentes posições do secador (A, B e C), como mostra a Figura 3.17 e determinadas as umidades finais pelo método gravimétrico, em estufa a 105°C.

Figura 3.17: Esquema de coleta das folhas para determinação de umidade



Fonte: Acervo pessoal

As posições referem-se às seguintes distâncias a partir da entrada do ar:

A = 75 cm, B = 65 cm e C = 55 cm

### 3.4. Avaliação da qualidade das folhas secas

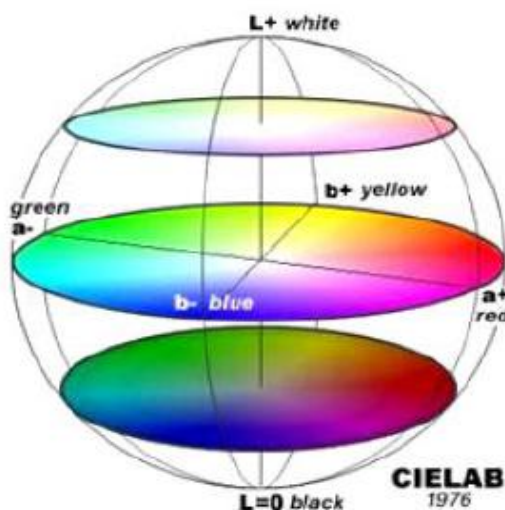
#### 3.4.1. Determinação da alteração de cor das folhas

A determinação da cor foi realizada por um espectrofotômetro CM-5 da marca Konica Minolta, para as folhas *in natura* e secas. As leituras das cores foram realizadas pelo sistema Cielab, no qual esse sistema expressa as cores em função de 3 parâmetros:  $L^*$ ,  $a^*$  e  $b^*$ . A correlação destes parâmetros é feita a partir de eixos de coordenadas  $a^*b^*$ , conforme mostrado na Figura 3.18.

As coordenadas  $a^*b^*$  representam a tonalidade pelos eixos  $a^*$  e  $b^*$ , com escala de 0 a 60, em que  $a^*$  define a transição do verde ( $-a^*$ ) ao vermelho ( $+a^*$ )

e  $b^*$  define a transição do azul ( $-b^*$ ) ao amarelo ( $+b^*$ ). O parâmetro  $L^*$  corresponde à luminosidade e está localizado perpendicular ao plano  $a^*b^*$ .

Figura 3.18: Sistema tridimensional Cielab



Fonte: Handprint (2014)

### 3.4.2. Teor de óleo essencial obtido das folhas secas

O teor de óleo também foi avaliado para as folhas secas a fim de compará-lo com o teor obtido da folha *in natura*, no qual se realizou a secagem das folhas em 2h nas temperaturas de 50, 60 e 70°C, a fim de avaliar a influência da temperatura de secagem. O processo de extração de óleo das folhas secas foi idêntico ao descrito no item 3.2.4. O teor de óleo foi calculado em base seca (ou seja, considerando a massa de folhas isenta de umidade) a partir da equação:

$$R_{b.s.} = \frac{M_o}{M_s} \cdot 100 \quad (7)$$

Sendo:  $M_o$  a massa de óleo e  $M_s$  a massa seca de folhas (massa seca + massa de óleo).

### 3.4.3. Análise da concentração de citrônella no óleo

Foi realizada a análise do citrônella presente no óleo essencial em cromatógrafo a gás (GC-17<sup>a</sup>) acoplado a um espectrômetro de massas (modelo QP 5050), da Shimadzu, utilizando o metanol como solvente, a fim de comparar as

concentrações de citronelal presente no óleo obtido para as folhas secas em relação às concentrações obtidas para a folha *in natura*. Os testes foram realizados no Laboratório de Cromatografia da USP de São Carlos.

## 4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

### 4.1. Caracterização das folhas

Na tabela 3, estão apresentadas as medidas da espessura média, área projetada, perímetro projetado, comprimento médio, umidade inicial, densidade aparente, teor de óleo e densidade *bulk* das folhas de *Corymbia citriodora*. As folhas apresentam formatos irregulares e tamanhos distintos, que são características peculiares de sua espécie. Têm grande variação de tamanho, o que dificulta a caracterização de suas dimensões.

Tabela 3: Propriedades físicas e físico-químicas das folhas *in natura*

Parâmetros	Média
Espessura média (mm)	0,31±0,02
Área projetada (cm <sup>2</sup> )	15,4±2,6
Perímetro projetado (cm)	33,0±3,1
Comprimento médio (cm)	14,5±2,7
Umidade inicial b.u. (%)	49,1±0,3
Densidade aparente (g/cm <sup>3</sup> )	1,09±0,03
Teor do óleo b.u. (%)	1,6±0,3
Densidade <i>bulk</i> (g/cm <sup>3</sup> )	0,14±0,02

Fonte: Acervo pessoal

Foram selecionadas para a avaliação da secagem, folhas maiores que 10 cm de comprimento, tendo sido obtido o valor médio de 14,5±2,7 cm. Como as folhas apresentam comprimentos elevados, a área projetada e o perímetro projetado também foram elevados, de 15±3 cm<sup>2</sup> e 33±3 cm, respectivamente.

A umidade inicial obtida foi de 49,1±0,3 %. O valor está de acordo com Castro *et al.* (2008), que afirmam que a umidade das folhas de *Corymbia citriodora* variam de 44 à 60 %. Esta umidade pode ser considerada baixa, se comparado aos valores encontrados na literatura para algumas folhas fitoterápicas, como por exemplo, as folhas de manjeriço (LIMA, 2013) e hortelã (COSTA, 2013) que possuem umidade de 88% (b.u.), as folhas de nim 88,33 % (b.u.) (PARKERT, 2009) e as folhas de betel 84,97 % (b.u.) (PIN *et al.*, 2009).

Em relação à densidade aparente, foi obtido o valor de 1,09±0,03 g/cm<sup>3</sup>, que está próximo ao valor encontrado por Braga (2002), de 1,006 g/cm<sup>3</sup>, e

que foi calculado a partir dos dados obtidos da porosidade (41,88 %) e da densidade real (1,739 g/cm<sup>3</sup>) da folha. Tendo em vista que se trata de um material biológico, a densidade aparente é função da umidade, a qual pode variar com o período do ano e o local de colheita das folhas, logo a densidade também pode variar de forma significativa.

O teor do óleo (b.u.) obtido foi de 1,6±0,3 % está de acordo com o valor encontrado para Vitti e Brito (2003), Bizzo, Hovell e Rezende (2009) e Vieira (2004), que afirmam que este varia de 0,5 à 2,0 % b.u. e 1,0 a 1,6 %, respectivamente. Verifica-se pelo desvio-padrão, que o teor varia significativamente, pois foram feitas extrações de folhas coletadas em dias distintos, no qual a temperatura do dia e a incidência de sol podem exercer influência no conteúdo de óleo presente na folha. Os teores da essência de uma mesma espécie podem variar de forma significativa com o local e horário de colheita, clima, solo, entre outros (VITTI; BRITO, 2003).

A densidade *bulk* obtida para a folha *in natura* foi de 0,14±0,02 g/cm<sup>3</sup>, e esta também foi estimada para as folhas secas, sendo de 0,020±0,001 g/cm<sup>3</sup>. Nota-se uma diminuição significativa desta, que é de apenas 15% em relação aos valores encontrados para as folhas *in natura*. Na secagem de folhas de manjeriço, Lima (2013) observou que a densidade *bulk* das folhas decresce de 0,089±0,001 g/cm<sup>3</sup> para 0,018 g/cm<sup>3</sup>.

## 4.2. Avaliação da secagem

### 4.2.1. Testes preliminares das medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar

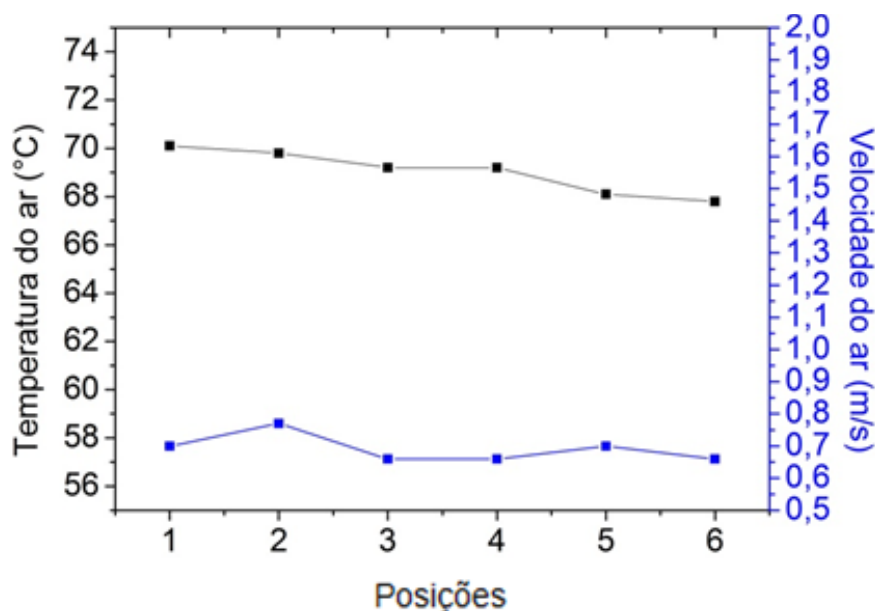
Foram feitas medidas de temperatura e velocidade do ar em 6 diferentes posições na direção perpendicular ao escoamento do ar. De acordo com o indicado na Figura 3.8, a posição 1 corresponde a x=15 cm, e a posição 6 à x= 2,5 cm. Os resultados estão mostradas na Figura 4.1.

Nota-se que para a temperatura, as medidas estão próximas entre si, sendo que a variação foi de 2,3°C entre as posições 1 e 6, mostrando tendência de pequena queda ao longo da seção transversal do duto. Para a velocidade do ar, a variação foi de até 0,11 m/s. Verifica-se que as variações podem ser consideradas pequenas, indicando que o ar alimentado ao secador possui distribuição uniforme de



temperatura e velocidade. Como não foi possível realizar as medidas no próprio cesto, admitiu-se que essas condições se mantêm no interior do secador.

Figura 4.1: Medidas de temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento do ar



Fonte: Acervo pessoal

O secador foi projetado com a intenção de promover condições de contato sólido-fluido uniforme, a fim de proporcionar condições favoráveis para garantir a homogeneidade da umidade final do conjunto. Com a verificação das condições de uniformidade da temperatura e velocidade do ar no duto de escoamento de ar pode-se inferir que a alimentação de ar fornece condições adequadas para que seja alcançada uma secagem uniforme.

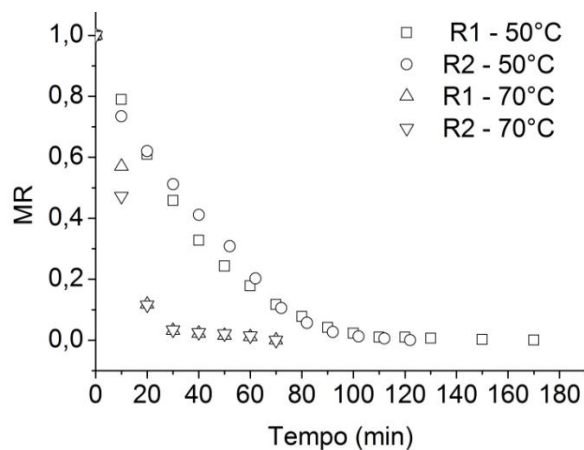
#### 4.2.2. Reprodutibilidade da cinética de secagem

Foram feitos testes para verificar se as curvas de secagem das folhas de eucalipto no cesto rotativo eram reprodutíveis. A Figura 4.2 mostra as curvas de MR em função do tempo para 50 g de folhas nas temperaturas de 50 e 70°C, no qual a letra R corresponde às repetições realizadas.

Nota-se que para os 2 tratamentos de secagem, as curvas de cinética foram reprodutíveis. Os máximos desvios padrões obtidos para os valores da umidade adimensional (MR) ficaram em torno de 0,03 e o  $R^2$  referente à correlação

das repetições foram de 0,9868 e 0,9918 para 50 e 70°C, respectivamente. Sendo assim, os desvios podem ser desprezados.

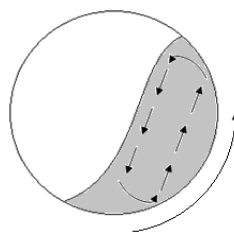
Figura 4.2: MR em função do tempo parametrizado em 50 g



Fonte: Acervo pessoal

Para a massa de folhas utilizadas nestes ensaios (50 g), foi observada uma boa movimentação do material durante toda a secagem, e as folhas foram bem misturadas, em um padrão similar ao regime de cascadeamento dos secadores de tambor rotativo, conforme ilustrado na Figura 4.3. Nesta figura, as setas ilustram o padrão de movimento das folhas e a região colorida, a região ocupada por elas no interior do cesto.

Figura 4.3: Ilustração da padrão de escoamento das folhas no interior do cesto (massa de 50 g).



Fonte: Acervo pessoal

As folhas de *Corymbia citriodora* apresentam ampla distribuição de tamanhos e formatos, mas apesar dessas características, como as folhas de eucalipto são mantidas em constante mistura no secador tipo cesto rotativo e o ar percola uniformemente o material ao escoar através das paredes perfuradas, essas

dificuldades são amenizadas e obtém-se boa reprodutibilidade das curvas de umidade em função do tempo e redução de umidade efetiva. No decorrer dos ensaios de secagem, observou-se também que o conjunto de folhas não encolheu de forma significativa e ficaram rígidas ao serem desidratadas. Este comportamento é muito diferente do observado na secagem de folhas de manjerição (LIMA, 2013) e hortelã (COSTA, 2013), por exemplo, que encolhem bastante ao serem desidratadas e tornam-se frágeis e quebradiças, o que contribui para reduzir o volume ocupado pelas folhas no secador. Como a densidade *bulk* das folhas de eucalipto diminui com a desidratação e as folhas de eucalipto possuem baixo conteúdo de umidade inicial, (conforme os valores mostrados na Tabela 3), o volume ocupado pelas folhas no interior do secador tende a aumentar, o que pode dificultar a movimentação das folhas no decorrer da secagem. Este é, portanto, um aspecto a ser investigado na operação do secador.

Após a verificação da reprodutibilidade dos dados, foi realizado um planejamento experimental, a fim de avaliar todas as variáveis que podem exercer influência no processo de secagem. Como foi observado esse aumento do volume das folhas no processo, incluiu-se a massa de material juntamente com as demais variáveis (temperatura e velocidade do ar, velocidade de rotação), com o propósito de avaliar como seria o comportamento da secagem para diferentes quantidades de material. O planejamento está apresentado a seguir.

#### **4.2.3. Avaliação das variáveis operacionais**

Foi proposto um planejamento experimental fracionado  $2^{4-1}$  para a avaliação das principais variáveis que exercem efeito na secagem de folha de eucalipto no secador tipo cesto rotativo, sendo estas: a massa de material (M), temperatura do ar (T), velocidade do ar (V) e rotação do cesto (R). Este planejamento foi construído a fim de determinar as principais variáveis que exercem efeito na secagem e, se possível, obter um modelo estatístico para representar a queda de umidade das folhas em função das variáveis investigadas. Neste item serão apresentados os resultados da análise de variância efetuada com o auxílio do software *Statística 7.0*. Como variável resposta, foi avaliado o tempo de secagem das folhas de *Corymbia citriodora* para cada condição.

A Tabela 4 apresenta os valores dos coeficientes de regressão, erro padrão, teste t, p-valor e os intervalos de confiança, mostrando a estimativa dos principais efeitos sobre o tempo de secagem das folhas.

Nota-se, a partir dos resultados da Tabela 4, que a velocidade do ar não exerce influência significativa sobre o processo de secagem, enquanto a temperatura tem influência significativa. Isto indica que, no processo de secagem das folhas de eucalipto, predomina a resistência interna à transferência de massa, ou seja, do interior para a superfície das folhas. Comportamento semelhante foi observado por vários autores que investigaram a secagem de folhas, de diferentes espécies e em diferentes equipamentos. Por exemplo, Gasparin (2012) na secagem de folhas de menta em leito fixo, utilizando velocidades do ar de 0,3 e 0,5 m/s. e Costa (2013) na secagem de folhas de hortelã em camada fina com escoamento de ar horizontal, utilizando velocidades do ar de 1,0, 1,5 e 2,0 m/s.

O aumento da velocidade de rotação também não influenciou o tempo de secagem, na faixa testada. Este comportamento já era esperado, pois foram utilizadas rotações maiores que as usualmente utilizadas em secadores rotativos.

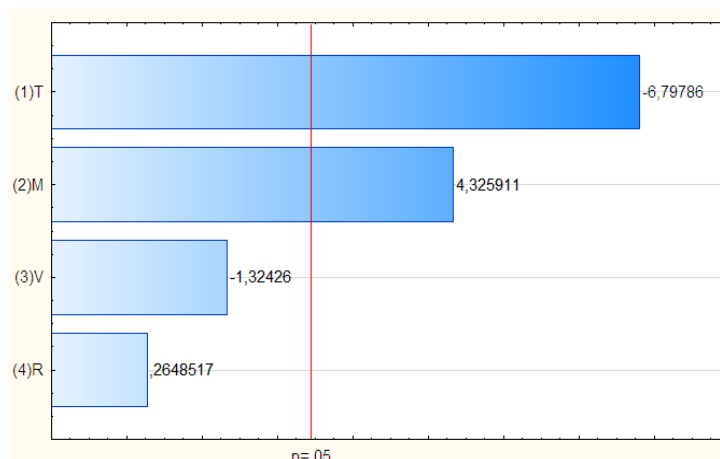
Tabela 4: Coeficientes de regressão para o tempo de secagem

Variáveis	Coeficiente de regressão	Erro padrão	t(6)	P	-95% Limite de confiança	95% Limite de confiança
Média	<b>0,392</b>	<b>0,025</b>	<b>15,573</b>	<b>0,000004</b>	<b>0,330</b>	<b>0,453</b>
T	<b>-0,270</b>	<b>0,029</b>	<b>-9,168</b>	<b>0,000095</b>	<b>-0,342</b>	<b>-0,198</b>
M	<b>0,088</b>	<b>0,029</b>	<b>2,994</b>	<b>0,024192</b>	<b>0,016</b>	<b>0,160</b>
V	-0,031	0,029	-1,062	0,328695	-0,103	0,040
R	-0,038	0,029	-1,317	0,235880	-0,111	0,033

$R^2 = 0,941$ ; Fonte: Acervo pessoal

Analisando os dados da Tabela 4 juntamente com o gráfico de pareto (Figura 4.4), nota-se que as variáveis que exercem influência significativa sobre o tempo de secagem, para o intervalo de confiança de 95% ( $p < 0,05$ ), foram a massa de material e a temperatura do ar de secagem. Ainda, a temperatura tem maior influência comparada à massa de material, sendo que, para o coeficiente de regressão correspondente à temperatura foi estimado um valor negativo, e logo, aumentando-se esta variável, o tempo de secagem será diminuído.

Figura 4.4: Gráfico de pareto para o tempo de secagem

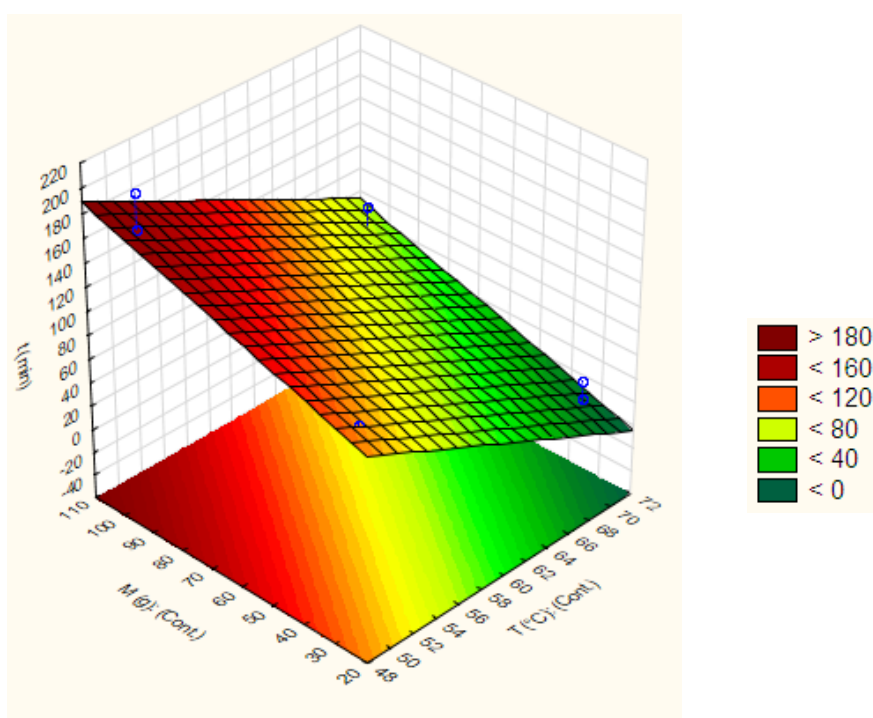


Fonte: Acervo pessoal

A Figura 4.5 mostra a superfície de resposta obtida para o tempo de secagem com as variáveis determinadas como influentes no processo. O modelo que representa esta superfície, equação (6), é válido na faixa de condições investigadas.

$$t = 324,14 - 4,81 \cdot T + 0,875 \cdot M \quad (6)$$

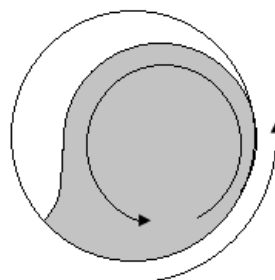
Figura 4.5: Superfície de resposta para o tempo de secagem das folhas



Fonte: Acervo pessoal

Quando se analisa o processo do ponto de vista físico, a influência da massa no tempo de secagem pode se dar por duas razões: (i) a energia térmica fornecida pode ser insuficiente para remover a maior quantidade de água presente quando se aumenta a massa do material; (ii) devido a um contato deficiente entre o ar e as folhas, que limita a transferência de calor e massa. A primeira hipótese, contudo, pode ser descartada nas condições avaliadas, porque os dados indicam que o processo de secagem é limitado pela resistência interna. O fato do aumento da velocidade do ar não contribuir para reduzir o tempo de secagem em nenhuma das condições testadas, é um indicativo de que a secagem ocorre com ar em excesso. Por outro lado, foi observado que, para a secagem com massa de 100 g, a movimentação das folhas no interior do secador piorava no decorrer da secagem. No processo, observou-se que as folhas ficavam rígidas e retorcidas, e o conjunto de folhas aumentava de volume. Assim, embora no início, as folhas *in natura* fossem bem misturadas, o enrijecimento das folhas e o aumento do volume fizeram com que o leito de folhas para a massa de 100 g se comportasse como um leito fixo giratório, conforme ilustrado na Figura 4.6. Não se observou desta forma, o movimento similar ao cascateamento desejado.

Figura 4.6: Esquema de 100 g folhas secas em vista lateral do cesto em movimento de rotação

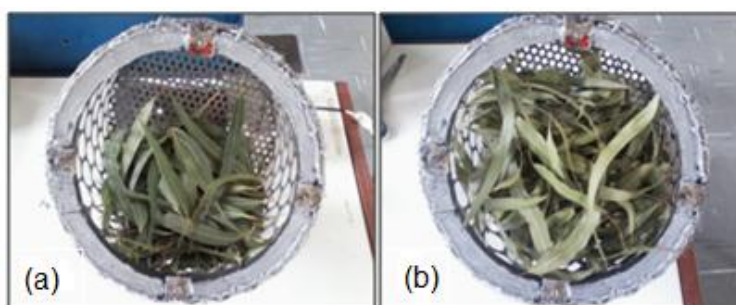


Fonte: Acervo pessoal

A expansão de volume das folhas após a secagem pode ser estimada a partir dos dados da densidade *bulk*, assumindo que os ‘pacotes’ sejam similares e que os valores de densidades *bulk* medidos fornecem estimativas razoáveis da densidade *bulk* das folhas no interior do cesto. No início, o volume ocupado por 100 g de folhas *in natura*, com base na densidade medida, de  $0,14 \pm 0,02 \text{ g/cm}^3$ , é igual a  $714 \text{ cm}^3$ , o que corresponde a cerca de 13% do volume do cesto. A massa seca

resultante após a secagem é de 51 g, e nesta condição o volume ocupado aumenta para 2250 cm<sup>3</sup>, e corresponde a cerca de 40% do volume do cesto, de acordo com a densidade *bulk* da folha seca, que é de 0,020±0,001 g/cm<sup>3</sup>. Assim, ao final da secagem, o volume ocupado pelas folhas é cerca de 3 vezes superior ao volume inicial, o que pode ser observado na Figura 4.7, que mostra o cesto com uma massa de 100 g no instante inicial e após a secagem.

Figura 4.7: Conjunto de folhas antes (a) e após a secagem (b) para 100 g de folhas



Fonte: Acervo pessoal

O aumento considerável do volume, somado ao fato das folhas ficarem rígidas e retorcidas no interior do cesto, impediram uma boa mistura e a troca efetiva de calor e massa, prejudicando a secagem. Esta dificuldade de movimentação das folhas observada para a massa de 100 g seria evitada com o aumento das dimensões do cesto. As dimensões utilizadas, de 20 cm de diâmetro e 18 cm de comprimento, não se mostraram adequadas para as folhas de eucalipto, cujo comprimento médio das folhas selecionadas é de cerca de 14 cm, portanto muito próximo ao comprimento do cesto. Para as quantidades de massa de 30 e 65 g, a movimentação das folhas foi boa do início até o fim do processo, apesar do aumento de volume.

Em vista disto, constata-se que houve diferenças no padrão de movimentação do material, sendo que, para 100 g, as folhas se comportaram como um leito fixo giratório e para 30 e 65 g, a mistura foi efetiva. A análise puramente estatística, contudo, não 'enxerga' que o padrão de escoamento se altera quando a massa de material aumenta para 100 gramas de folhas e por isto a massa aparece como uma variável que influencia o processo. Porém, a variável que de fato exerce

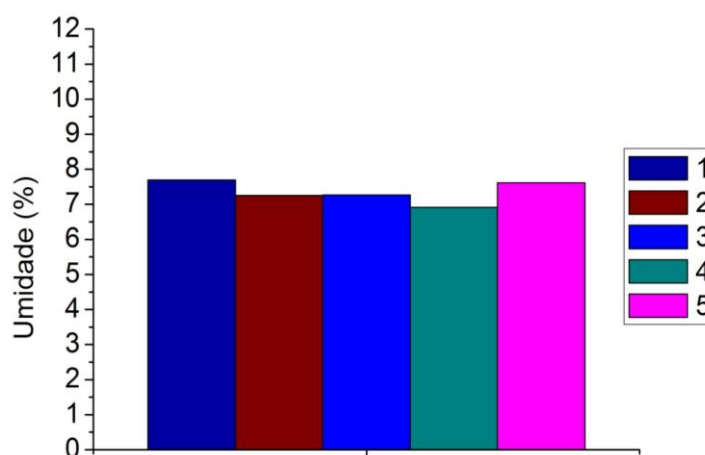
influência no processo é o padrão de escoamento das folhas e não a massa de material.

Os materiais biológicos, em particular as folhas, geralmente encolhem consideravelmente e se deformam durante a secagem ou tornam-se quebradiços, fazendo com que o volume dos leitos de folhas diminua com a desidratação (Ramallo *et al.*, 2001). De acordo com Van Arsdel, Copley e Morgan (1973), as células vivas, de origem animal ou vegetal, exibem um comportamento chamado “turgor”, ou seja, o líquido (água) presente distende a parede celular, e esta comprime o líquido contido no seu interior. Durante a secagem, com a retirada de água, a tensão que o líquido exerce sobre a parede celular é diminuída. Essa diminuição de tensão produz o encolhimento do material. As folhas de eucalipto, contudo, não apresentaram este comportamento, o que possivelmente está relacionado com as características morfológicas e estruturais destas folhas.

#### 4.2.4. Avaliação da eficiência da uniformidade da secagem no secador tipo cesto rotativo

A avaliação da uniformidade da secagem foi feita inicialmente, para a massa de 50 g, um valor intermediário entre as massas de 35 e 60 g testadas no planejamento no item 3.3.4 e que apresentaram boa mistura. Após a secagem de 1,5h em 70°C, foram coletadas amostras de 5 posições diferentes do cesto, e determinadas as umidades finais pelo método gravimétrico, conforme mostra a Figura 4.8.

Figura 4.8: Umidades finais (b.u.) para 50 g após 1,5 h de secagem



Fonte: Acervo pessoal

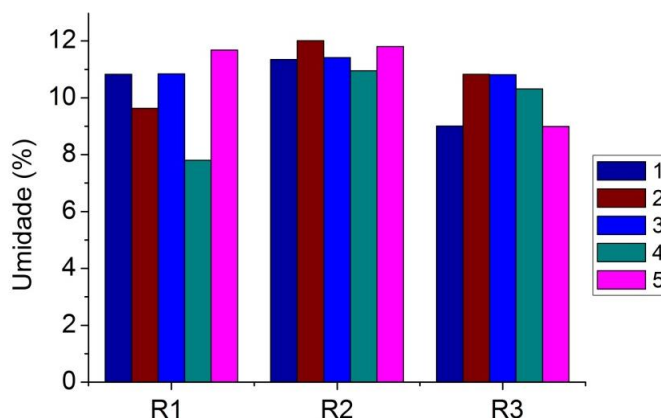


As umidades ficaram entre 6,9 e 7,7 %, apresentando uma variação muito pequena (0,8%), tendo como média entre as medidas de  $7,3 \pm 0,3\%$ . Para 50 g, o padrão de movimentação das folhas foi bom do início até o final do processo, apesar do aumento de volume do conjunto de folhas. Logo, o contato entre o ar e o material foi uniforme. Em função disto, optou-se por trabalhar com a carga de 50 g na avaliação do efeito da temperatura na curva de secagem das folhas.

A densidade *bulk* foi determinada calculando-se a razão entre uma determinada massa de folhas e o volume que estas ocupam no recipiente, ou seja, o volume do leito empacotado. Admitindo-se que a densidade *bulk* é aproximadamente a densidade no interior do cesto, foi estimado o volume que o material ocupa no seu interior, onde foi calculado o percentual de volume. Esta carga de material representa aproximadamente 6,5% do volume do cesto para as folhas *in natura* e 22% para as folhas após a secagem. Adotando como referência os secadores de tambor rotativo convencional com cascadeamento, a fração de material adequada para o processo deve estar entre 10 e 15% do seu volume (BICALHO *et al.*, 2010). Estes resultados mostram que para o secador tipo cesto rotativo operando com folhas de eucalipto, a fração de material úmido deve ser ainda menor para proporcionar uma condição ótima de secagem.

Com o intuito de avaliar o grau de não homogeneidade em uma condição de secagem que não é a ideal, foi realizada a secagem de 100 g de folhas em 2h na temperatura de 70°C, para 3 repetições, com o mesmo procedimento de coleta das amostras ao final da secagem de 50 g. As umidades estão dispostas na Figura 4.9.

Figura 4.9: Umidades finais (b.u.) para 100 g após 2 h de secagem



Fonte: Acervo pessoal

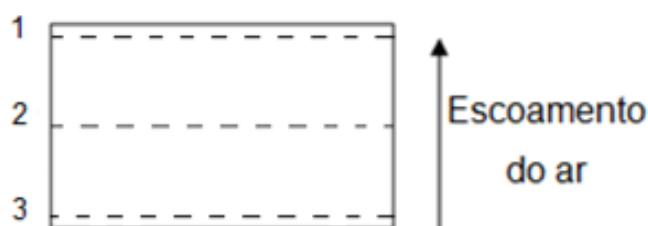
Nota-se que as umidades nas diferentes posições tiveram variações maiores entre si, com diferenças máximas de até 4%. Para as amostras 2 e 3, os desvios foram menores, em torno de 1,2 e 2%, respectivamente.

Verifica-se que as diferenças entre as umidades não foram reprodutíveis entre as repetições. Isto se deve ao fato de a amostra se comportar como um leito fixo, sem um padrão de movimentação definido e cuja estrutura não pode ser reproduzida entre diferentes ensaios. As umidades entre 8 e 12 % estão na faixa recomendada por Rocha (2012) para armazenamento, porém, uma variação de 4% não pode ser considerada desprezível. Essa variação, contudo, é justificada, já que 100 gramas de folhas não é a quantidade ideal para ser inserida no secador, conforme discutido anteriormente.

Não foram encontradas na literatura informações sobre o desempenho de outros métodos/tipos de secadores no que se refere à homogeneidade da secagem de folhas de eucalipto, e aproveitando o fato de que o Centro de Secagem – DEQ UFSCar possui diversos tipos de secadores, decidiu-se avaliar a secagem em outras configurações. O objetivo é ter dados comparativos para avaliar a eficiência do secador desenvolvido em termos de uniformidade da secagem. Para viabilizar esta comparação, foi fixado um tempo de secagem de 2 h e avaliou-se a secagem em 2 configurações envolvendo leitos fixos e no secador rotativo convencional.

A retirada das amostras para medida da umidade nas diferentes alturas dos leitos fixos está esquematizada na Figura 4.10, no qual 1=topo da camada de folhas, 2 = meio da camada e 3 = base da camada, no qual as alturas referentes à retirada das amostras estão dispostas na legenda dos respectivos gráficos.

Figura 4.10: Esquema de coleta de folhas: 1, 2 e 3 correspondem à altura do leito



Fonte: Acervo pessoal

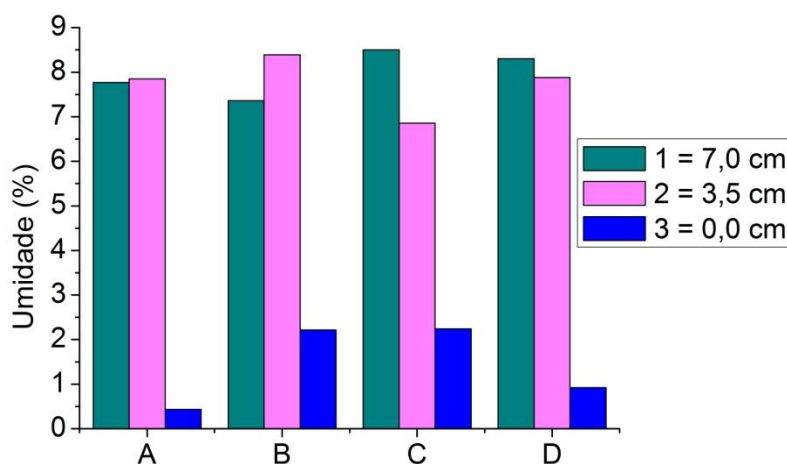
Os resultados referentes aos respectivos métodos estão apresentados a seguir:

- Leito fixo de 7 cm de altura com escoamento de ar ascendente em 70°C e 0,75 m/s:

Esta configuração com escoamento de ar através do leito fixo é a menos indicada para a obtenção de uma secagem uniforme, já que as condições do ar de secagem mudam ao longo da altura do leito.

As umidades obtidas para o leito fixo com escoamento de ar ascendente estão dispostas na Figura 4.11, sendo que as letras A, B, C e D referem-se à diferentes posições radiais do leito.

Figura 4.11: Umidades após 2h de secagem (b.u.) obtidas na secagem em leito fixo com escoamento de ar ascendente



Fonte: Acervo pessoal

Nota-se que entre as posições radiais, as umidades tiveram pouca variação, com diferenças de no máximo 2%, podendo-se inferir que as condições do ar eram razoavelmente uniformes na secção transversal do leito. Para as umidades finais obtidas nas diferentes posições axiais do leito, notam-se diferenças consideráveis na umidade, de até 7,4%, mostrando que existe um gradiente de umidade acentuado entre a base e o topo do leito. Este valor representa 9 vezes a diferença máxima de umidade obtida para 50 g no cesto rotativo, que foi de 0,8%.

Os valores encontrados para as folhas dispostas no meio (2) e no topo do leito (1) ficaram próximos entre si, com umidades entre 6,86% e 8,50%, tendo diferenças de até 1,64% no valor de umidade, porém, nota-se que as folhas

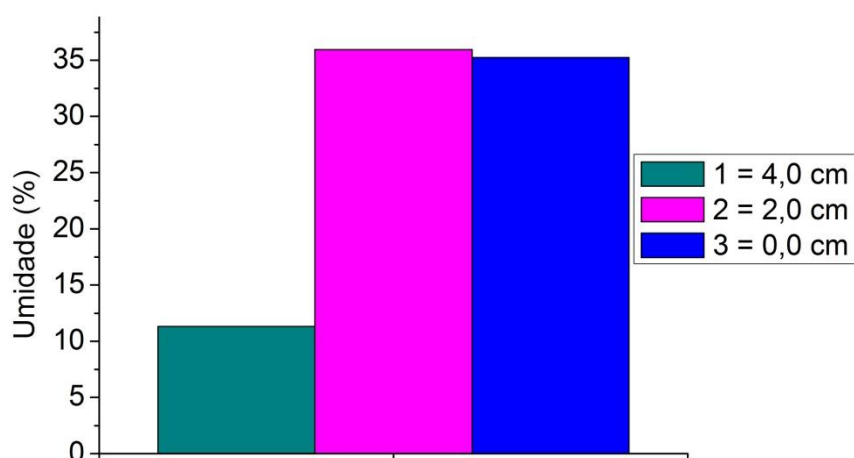
dispostas na base do leito (3), que fica mais próxima à entrada de ar quente, ficaram bem mais secas, com umidades entre 0,43 e 2,24%.

As folhas mais próximas à entrada do ar (altura 3) secam mais rapidamente porque entram em contato com o ar aquecido e com baixa umidade. A umidade das amostras é transferida para o ar, reduzindo sua temperatura. À medida que o ar escoava, seu potencial de secagem diminuiu, assim, as camadas superiores (alturas 2 e 3) trocam menos massa e ficam com umidade maior que as folhas localizadas na base (altura 3), resultando em uma umidade não-uniforme da amostra seca.

- Leito fixo com escoamento de ar horizontal em 70°C e 0,75 m/s:

Para a secagem em leito fixo com ar escoando na superfície das amostras de 4 cm de altura, também houve formação de gradientes de umidade como pode ser observado na Figura 4.12.

Figura 4.12: Umidades (b.u.) após 2 h de secagem obtidas para o leito fixo com escoamento de ar horizontal em 0,75 m/s



Fonte: Acervo pessoal

As amostras retiradas das alturas 2 (posição intermediária do leito) e 3 (base do leito) da bandeja tiveram umidades mais elevadas em relação à amostra retirada da altura 1 (topo do leito), sendo até 3 vezes superior. O escoamento do ar ocorreu paralelo à superfície das folhas, de forma que, para as folhas localizadas na altura 1 da camada, houve um contato mais efetivo entre o ar e as amostras, e o ar não percolou da mesma forma os interstícios das folhas localizadas nas alturas 2 e 3. Assim, as folhas localizadas na altura da camada 1 secaram mais rapidamente,

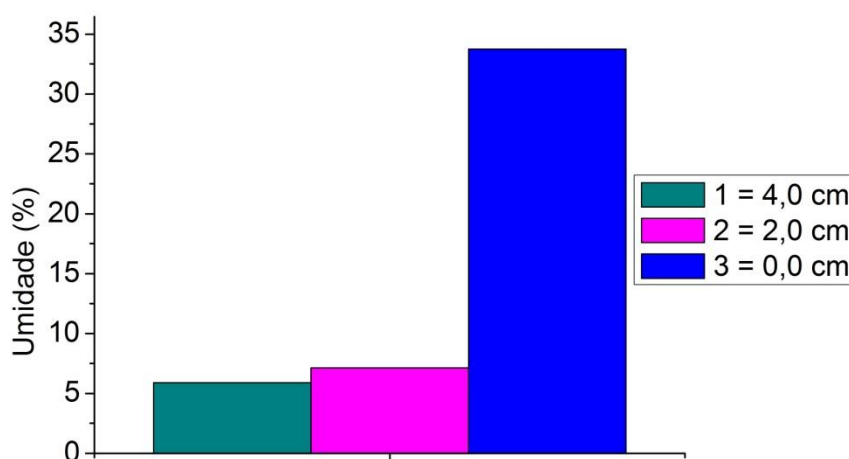
enquanto que a transferência de massa foi prejudicada para as outras camadas, ocorrendo a heterogeneidade no processo.

É importante ressaltar que a quantidade de folhas usada para formar uma camada aproximada de 4 cm na bandeja, foi de 100 gramas de folhas. Comparando este método com a secagem no cesto rotativo para a mesma quantidade de material (Figura 4.9), nota-se que o cesto rotativo melhorou a uniformidade da secagem de forma expressiva. Apesar do regime de escoamento para 100 g de folhas não ser o adequado para o processo, o sentido do escoamento do ar perpendicular ao sentido de rotação do cesto melhora o contato entre o ar de secagem e o material, favorecendo a transferência de calor e massa.

Também foi realizado um teste de secagem em leito fixo com escoamento de ar horizontal utilizando uma velocidade de ar maior, sendo esta de 1,5 m/s. As umidades retiradas de 3 alturas das bandejas estão apresentadas na Figura 4.13.

Nota-se que o aumento da velocidade do ar reduziu o gradiente de umidade nas 2 primeiras posições da bandeja, e as umidades ficaram próximas, entre 5,91 e 7,13 %. O aumento da velocidade de ar, além de implicar em aumento da energia térmica, possivelmente melhora a percolação desta pelos interstícios do leito em relação à velocidade mais baixa. No entanto, para as folhas localizadas na posição 3, que corresponde à base da camada de folhas, a umidade permaneceu elevada, em torno de 35%.

Figura 4.13: Umidades após 2 h de secagem (b.u.) obtidas para o leito fixo com escoamento de ar horizontal a 1,5 m/s



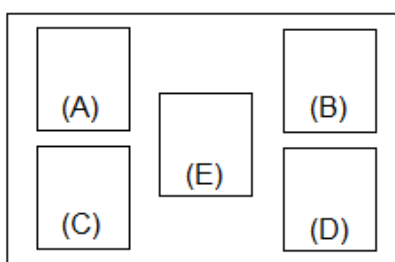
Fonte: Acervo pessoal

Pode-se afirmar que esta heterogeneidade da umidade das folhas poderia ser minimizada prolongando-se o tempo de secagem. No entanto, o uso de tempos desnecessariamente longos pode contribuir para volatilizar o óleo essencial contido nas folhas, ou mesmo causar deterioração em parte das folhas expostas por maior tempo as altas temperaturas, ou seja, a qualidade do material não seria uniforme. Além disto, seria um gasto desnecessário de energia, o que poderia até inviabilizar o processo.

- Estufa com renovação e circulação de ar:

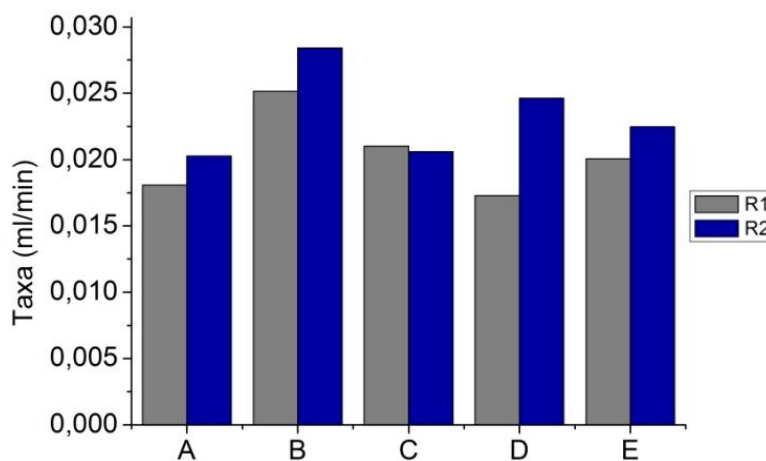
Com o propósito avaliar de a uniformidade da temperatura no interior da estufa, foram feitos testes de evaporação de água nas prateleiras 2, 3 4 e 6, mantendo-se a estufa em 70°C, com os recipientes localizados nas posições A, B, C, D e E (como mostra a Figura 4.14). Foram calculadas as taxas de evaporação referentes às suas posições e os resultados estão dispostos nas Figuras 4.15, 4.16, 4.17 e 4.18.

Figura 4.14: Esquema de localização da bandeja na estufa



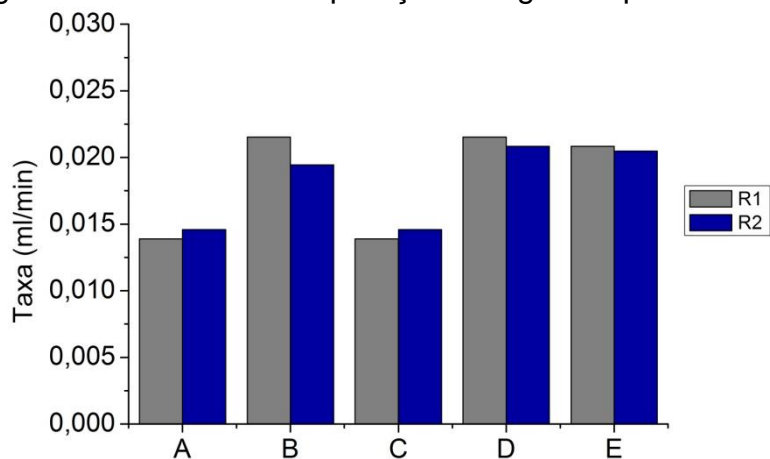
Fonte: Acervo pessoal

Figura 4.15: Taxa de evaporação dá água na prateleira 2



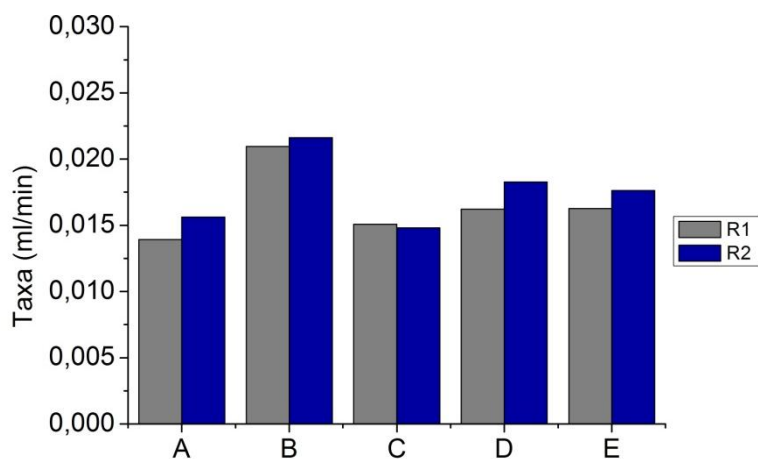
Fonte: Acervo pessoal

Figura 4.16: Teste de evaporação da água na prateleira 3



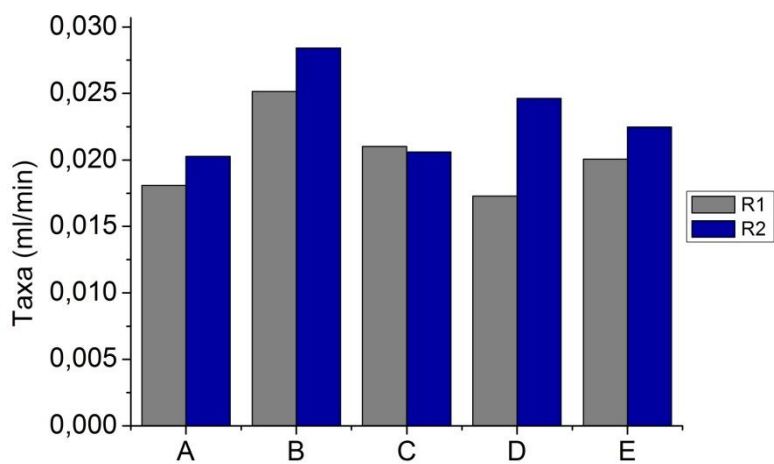
Fonte: Acervo pessoal

Figura 4.17: Taxa de evaporação da água a prateleira 4



Fonte: Acervo pessoal

Figura 4.18: Taxa de evaporação da água na prateleira 6



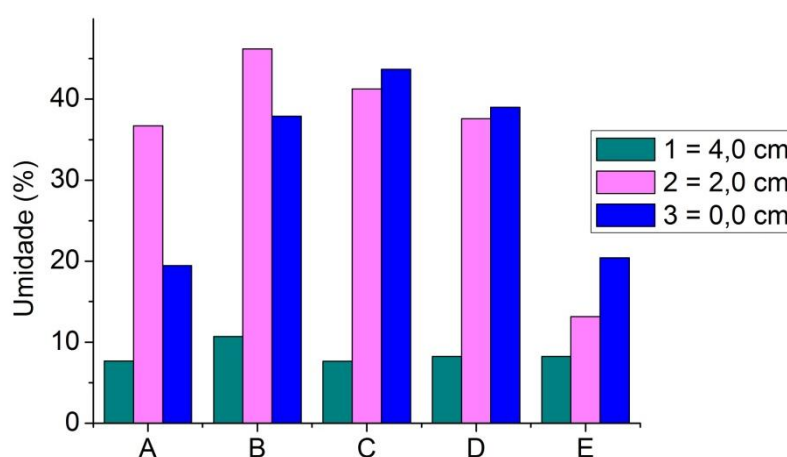
Fonte: Acervo pessoal

Nota-se que a evaporação da água ocorre de forma desigual para diferentes locais na mesma prateleira, sendo as maiores taxas de evaporação, (em média 0,020 ml/min) observadas nas posições B, D, e E, indicando que nesta região a temperatura é mais alta. É evidente que, se a temperatura no interior da estufa não é uniforme, a ponto de provocar diferenças significativas entre as taxas de evaporação da água, possivelmente resultará em umidades não uniformes na secagem de folhas, para um mesmo tempo de secagem.

Verifica-se que as medidas das variações entre as umidades nas diferentes posições são maiores para a prateleira 2, 4 e 6, com diferenças médias entre as 2 repetições de 0,070 ml/min na taxa das prateleiras 2 e 4, e de 0,075 ml/min para a prateleira 6. Para a prateleira 3 a diferença média das 2 repetições ficou em torno de 0,065 ml/min. Portanto, escolheu-se a prateleira 3, sendo localizada próxima ao centro para a avaliação da homogeneidade da secagem de folhas, pois infere-se que como possui a menor variação, as condições do ar são mais uniformes.

As bandejas foram localizadas nas mesmas posições utilizadas para a evaporação da água, a fim de verificar a perda de umidade nos diferentes locais em 3 alturas das bandejas. As umidades estão mostradas na Figura 4.19.

Figura 4.19: Umidades (b.u.) obtidas em diferentes posições para a estufa industrial após 2 h de secagem.



Fonte: Acervo pessoal

Nota-se que as umidades obtidas ficaram muito elevadas para as folhas localizadas nas alturas 2 e 3 das bandejas, com umidades próximas da

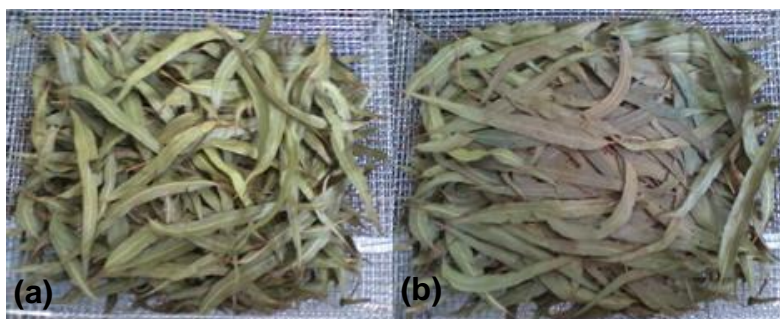


umidade inicial, exceto para a bandeja (E) que ficou localizada no centro da prateleira, onde as umidades ficaram mais próximas, embora ainda sejam bem diferentes entre si.

A bandeja (E) ficou localizada no centro, com mais espaços vazios ao seu redor, o que pode ter favorecido a transferência de umidade.

Na Figura 4.20 podem ser visualizadas as folhas após as 2h de secagem em 2 posições na altura da bandeja (D), onde  $a = 4$  cm e  $b = 2$  cm.

Figura 4.20: Imagem das folhas localizadas na altura 1 (a) e na altura 2 da bandeja (b)



Fonte: Acervo pessoal

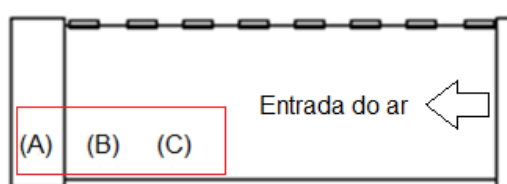
Observa-se que as folhas localizadas na extremidade superior ficaram mais secas e mantiveram a coloração esverdeada, mas ao retirar a primeira camada de material, verifica-se que as folhas localizadas na parte mais interna da bandeja ficaram úmidas e escurecidas, comprometendo a qualidade final do produto. Estes resultados repetem o padrão observado para a secagem das folhas em bandeja com convecção forçada, discutido anteriormente e devem-se também ao contato não uniforme do leito de folhas com o ar ambiente. Os dados reforçam o que foi discutido anteriormente, sobre a importância do revolvimento do material na secagem em bandejas, a fim de melhorar o contato sólido-fluido e garantir uma secagem uniforme.

O secador tipo tambor rotativo é um equipamento que, em princípio, permite boa movimentação do material e é considerado adequado para a secagem de folhas. Assim, foi realizado um procedimento de secagem no secador rotativo convencional, a fim de avaliar a homogeneidade da secagem no cesto rotativo em um secador de características aproximadas deste, que está apresentado a seguir:

#### - Secador rotativo convencional

Foi realizado um teste de secagem num secador rotativo convencional utilizando 2 RPM, na temperatura de 70°C e velocidade do ar de 0,6 m/s, com duração de 2 h, para 150 gramas de folhas. As umidades foram coletadas nas posições axiais A, B e C, como mostra a Figura 4.21. Sendo as distâncias correspondentes às da entrada do ar de: A = 75 cm, B = 65 cm e C = 55 cm.

Figura 4.21: Representação esquemática das folhas localizadas no secador ao final do processo



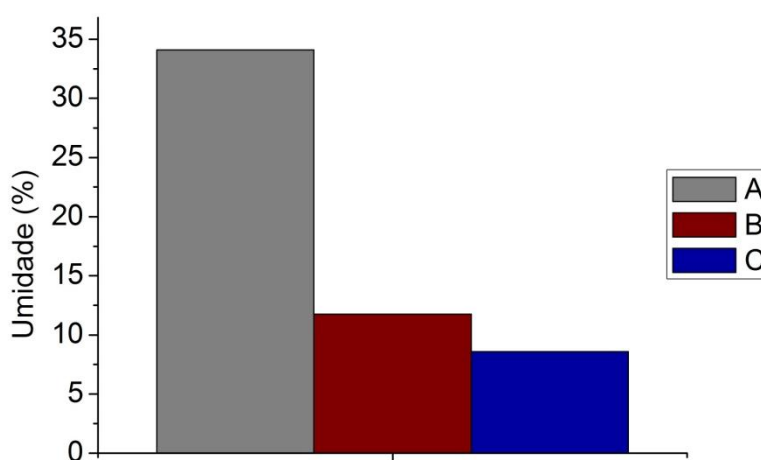
Fonte: Acervo pessoal

Durante o processo, verificou-se que no início, o cascadeamento das folhas *in natura* era evidente. Conforme foi ocorrendo a secagem, as folhas foram arrastadas pelo ar ao longo do comprimento do casco, devido à perda de massa, apesar de ter sido utilizada uma baixa velocidade do ar. Isto fez com que algumas folhas escapassem do casco em rotação e ficassem alojadas na tampa do secador, sem a movimentação. Assim, ocorreu a concentração de folhas na extremidade oposta à saída de ar, como mostra a região destacada da Figura 4.21. Foi observado também um aumento no volume ocupado pelas folhas, de modo que o cascadeamento ficou prejudicado. No entanto, uma mistura razoável das folhas no interior do casco ainda era perceptível apesar deste empecilho. Devido ao arraste das folhas, foi efetivamente utilizado na secagem um comprimento muito pequeno do secador, cerca de 20 cm. A adaptação do secador para a operação com folhas exigiria um esforço considerável e fora do escopo deste trabalho. Apesar destas dificuldades, foi possível efetuar a secagem e, optou-se por apresentar os resultados dos testes de homogeneidade, para se ter um indicativo do desempenho deste secador. Os dados estão mostrados na Figura 4.22.

Nota-se que a umidade das folhas localizadas na posição (A) ficou extremamente elevada, de aproximadamente 35%. Isto porque esta posição correspondia à tampa do secador, onde as folhas não se movimentavam. As

umidades das folhas que permaneceram em rotação no interior do cilindro ficaram mais próximas entre si, de 11,76 % para a posição (B) e de 8,59% para a posição (C). Esta diferença, de 3,17%, para amostras coletadas em uma distância de apenas 10 cm entre si, é significativa, e indica que a formação de gradientes de umidade na direção do escoamento do ar é uma possibilidade na secagem em batelada com tambores rotativos.

Figura 4.22: Umidades finais (b.u.) obtidas para o secador rotativo convencional após 2h em 70°C



Fonte: Acervo pessoal

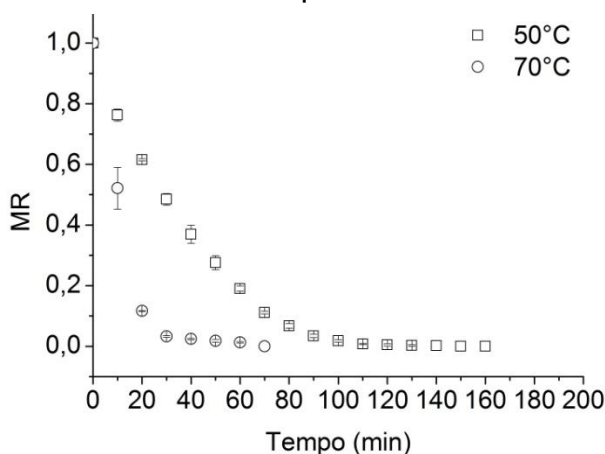
Os resultados dos ensaios de homogeneidade mostram que o secador tipo cesto rotativo apresenta boa eficiência no que se refere à uniformidade da secagem, desde que seja operado em condições que garantam a boa movimentação das folhas. No caso da secagem das folhas de eucalipto, a carga máxima de folhas frescas deve ser inferior a 10% do volume do cesto, para que o aumento de volume na secagem não prejudique a mistura.

#### 4.2.5. Avaliação da influência da temperatura na cinética de secagem das folhas

Foram feitos testes para avaliar o efeito da temperatura (50 e 70°C) na secagem de folhas de *Corymbia citriodora*, fixando a velocidade do ar em 0,75 m/s e a rotação do cesto em 4 RPM. A Figura 4.23 mostra a curva de MR médio em função do tempo de secagem parametrizadas na massa de material. Como as curvas foram reprodutíveis, foram avaliadas as médias.

Observa-se que a temperatura influenciou fortemente a retirada de umidade e de forma significativa na diminuição do tempo de secagem. Em 70°C, a redução no tempo de secagem é aproximadamente 56% em relação à temperatura de 50°C. Nos primeiros 30 minutos de secagem a 70°C, a umidade adimensional caiu para um valor de próximo de 0,1. Comportamento similar foi relatado no trabalho de Mochi (2005), na secagem de folhas de *Eucalyptus camaldulensis* em leito fixo, utilizando temperaturas de 35 a 70°C, com velocidade de 0,6 m/s. A autora verificou que a maior parte da umidade foi retirada após 30 minutos de secagem para temperaturas superiores a 50°C.

Figura 4.23: MR médio em função do tempo para 50 g parametrizados na temperatura do ar



Fonte: Acervo pessoal

Efeitos semelhantes da influência da temperatura foram observados na secagem de folhas de aroeira, menta, ervas medicinais, capim limão e de betel, por Goneli (2014), Gasparin (2013), Kaya e Aydin (2009), Martinazzo (2006) e Pin *et al.* (2009), respectivamente.

### 4.3. Avaliação da qualidade final das folhas secas

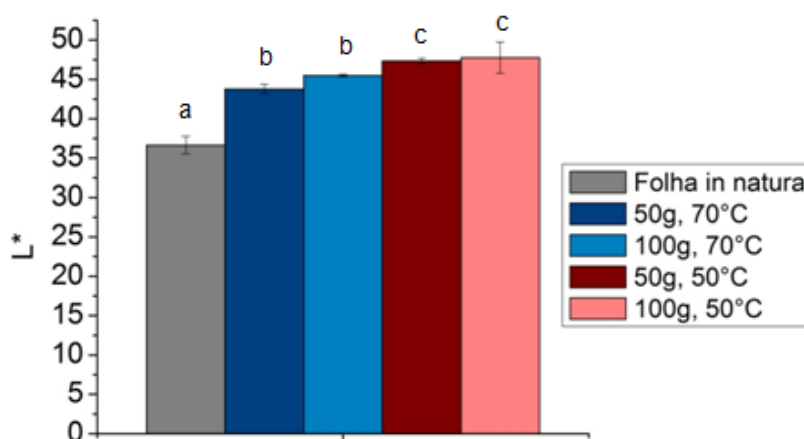
#### 4.3.1. Alteração das coordenadas colorimétricas ( $L^*$ , $a^*$ e $b^*$ ) das folhas

A avaliação da cor foi realizada para os tratamentos de secagem com 50 e 100 g de folhas, nas temperaturas de 50 e 70°C, sendo o tempo de secagem

correspondente ao da estabilidade da massa ao final da secagem. As análises de qualidade foram feitas para as folhas secas em condições de boa mistura (50 g) e também para a condição em que a mistura foi ruim (100 g), visando verificar os parâmetros nas 2 situações. As Figuras 4.24, 4.25 e 4.26 mostram as coordenadas  $L^*$ ,  $a^*$  e  $b^*$  das folhas secas comparadas às das folhas *in natura*. A fim de comparar os tratamentos utilizados, foi feito o teste de Tukey a 5% de probabilidade, onde as médias representadas pela mesma letra não diferem entre si.

Para os valores obtidos da luminosidade ( $L^*$ ) (Figura 4.24), nota-se que aumentaram para todos os tratamentos de secagem em relação ao valor obtido para a folha *in natura*. Assim, as folhas não apresentaram escurecimento, visto que o valor de  $L$  varia de 0% (preto) à 100% (branco), e estes ficaram mais perto do branco, ou seja, apresentaram cor mais clara após a secagem.

Figura 4.24: Valores médios de  $L^*$

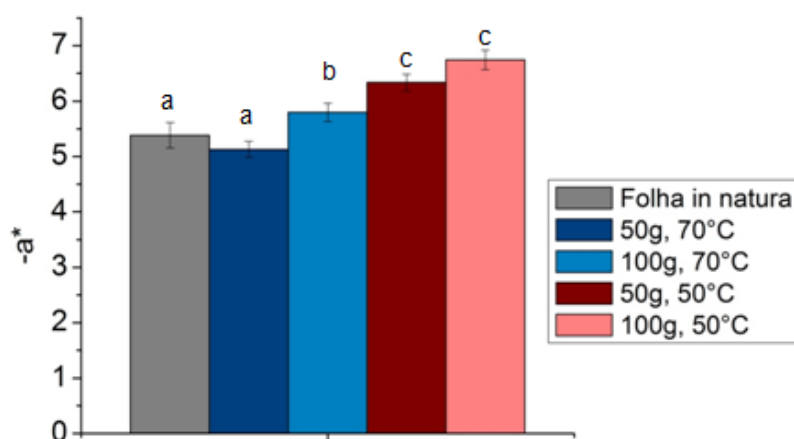


Fonte: Acervo pessoal

Para as folhas secas à 50°C, os valores obtidos foram maiores comparados aos valores obtidos para as folhas secas à 70°C, para o nível de significância de 95%. Logo, os valores referentes às temperaturas de 50 e 70°C apresentaram uma pequena diferença estatística. Resultados similares foram encontrados no trabalho de Buchailot, Caffin e Bhandari (2009) na secagem de folhas de limão murta, em que todos os valores de  $L^*$  aumentaram para as folhas secas, porém os valores decresceram conforme a temperatura do ar foi aumentada, sendo as temperaturas utilizadas de 30, 40 e 50°C.

Para os valores obtidos da cor verde ( $a^*$ ) (Figura 4.25), somente o valor obtido para a secagem de 50 g em 70°C não apresentou diferença estatística em relação ao valor obtido para a folha *in natura*, que foi a condição que apresentou o menor tempo de secagem. Em relação aos valores obtidos para os outros tratamentos de secagem, todos apresentaram diferença estatística para o nível de significância de 95%. Conforme se diminuiu a temperatura, aumentou-se o tempo de secagem, e notou-se que o valor de  $a^*$  ficou mais negativo. Como o valor de  $a^*$  varia de ( $-a^*$ ) verde ao vermelho ( $+a^*$ ), isto indica que a cor das folhas teve uma tendência a ficar mais verde, porém os valores de luminosidade aumentaram, então as folhas apresentaram gradativamente a cor verde clara. No entanto, observou-se visualmente que estas condições de secagem não prejudicaram a boa aparência das folhas. Logo, a temperatura de secagem não foi a variável de influência na alteração da cor, e sim, o tempo de secagem das folhas, ou seja, o maior tempo de exposição das folhas ao ar quente.

Figura 4.25: Valores médios de  $a^*$



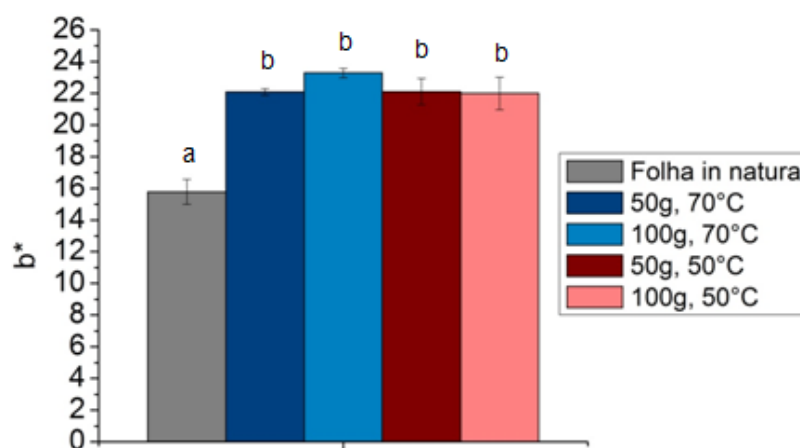
Fonte: Acervo pessoal

Alguns autores observaram que a perda da cor verde foi devido ao aumento da temperatura de secagem, como Gasparin (2009), que observou que para as temperaturas de 30, 40 e 50°C, a cor verde da folha de *Mentha piperita* não foi afetada, mas conforme a temperatura de secagem foi aumentada para 60 e 70°C, a cor verde foi alterada. Buchailot, Caffin e Bhandari (2009) observaram a perda gradativa da cor verde das folhas de limão murta, conforme foi aumentada a temperatura de secagem, sendo estas de 30, 40 e 50°C.

De acordo com Llewellyn, Mantoura e Brereton (1990) citados por Buchailot, Caffin e Bhandari (2009), a perda da cor verde original da folha é devido à degradação da clorofila pela fotodegradação, quando a luz e o oxigênio estão presentes no aquecimento.

Os valores obtidos para a coordenada  $b^*$  (Figura 4.26) variam de (+ $b^*$ ) amarelo ao azul (- $b^*$ ).

Figura 4.26: Valores médios de  $b^*$



Fonte: Acervo pessoal

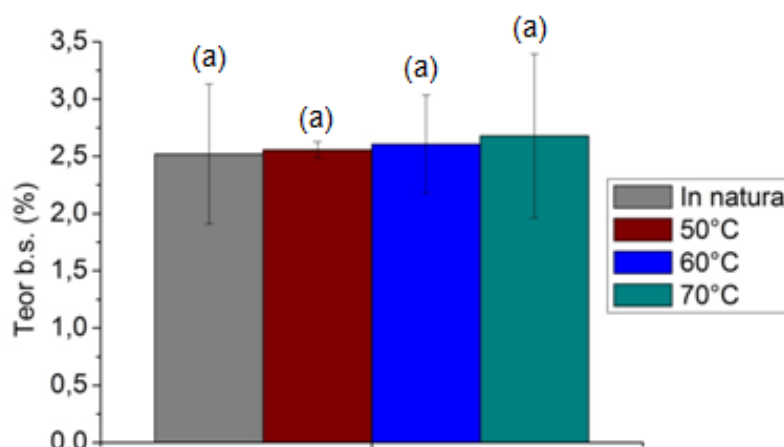
Nota-se que para todos os tratamentos de secagem não houve diferença significativa entre si para o nível de significância de 95% para o teste de Tukey, apesar de diferentes tempos de secagem obtidos. Contudo, aumentaram comparados ao valor médio obtido para a folha *in natura*. Resultados semelhantes foram encontrados no trabalho de Buchailot, Caffin e Bhandari (2009), onde todas as condições de secagem provocaram o aumento do valor de  $b^*$  após o processo. Logo, a temperatura de secagem não teve influência na alteração dos valores de  $b^*$ .

#### 4.3.2. Avaliação do teor de óleo (b.s.) essencial das folhas secas em relação à folha *in natura*

Os teores de óleo obtidos para os tratamentos de secagem nas temperaturas de 50, 60 e 70°C estão mostrados na Figura 4.27, onde foi realizado o teste de Tukey a 95% de confiança, e para as mesmas letras os tratamentos não diferem entre si.

A fim de comparar os teores de óleo obtidos para as folhas secas em relação aos obtidos para a folha *in natura*, estes foram calculados com base na massa seca de folhas (massa seca de folha + massa de óleo), de forma a utilizar a mesma base de comparação tanto para a folha *in natura*, como para as folhas secas.

Figura 4.27: Teor de óleo essencial (b.s.) para os diferentes tratamentos em relação à folha *in natura*



Fonte: Acervo pessoal

Nota-se que os teores obtidos para as folhas secas em diferentes temperaturas não mudaram estatisticamente entre si, e nem em relação aos teores obtidos para a folha *in natura*, sendo a média total de  $2,5 \pm 0,4\%$  (b.s.). Assim, a temperatura do ar de secagem não teve influência sobre a produção de óleo.

Observa-se que os desvios padrões foram elevados, e isto pode ser explicado pelo fato de que foram realizadas coletas de folhas em 2 dias diferentes para os procedimentos experimentais, e sabe-se que a composição pode variar em função do dia da colheita.

Braga (2002) realizou a secagem das folhas de *Corymbia citriodora*, utilizando o leito fixo em temperaturas de 30 a 60°C, e verificou que, para temperaturas superiores à 50°C, o teor de óleo (b.s.) decresceu. Como os métodos de secagem utilizados foram diferentes, maiores investigações seriam necessárias para esclarecer esta diferença nos comportamentos.



### 4.3.3. Concentração de citronelal no óleo

Foi avaliada a concentração de citronelal das folhas secas, para comparar com a concentração obtida para a folha *in natura*. Na Figura 4.28 é possível observar o cromatograma do citronelal para a folha *in natura* e os tratamentos de secagem sobrepostos. Os resultados da concentração do citronelal estão mostrados na Figura 4.29.

Figura 4.28: Cromatograma do citronelal para a folha *in natura* com os tratamentos de secagem sobrepostos

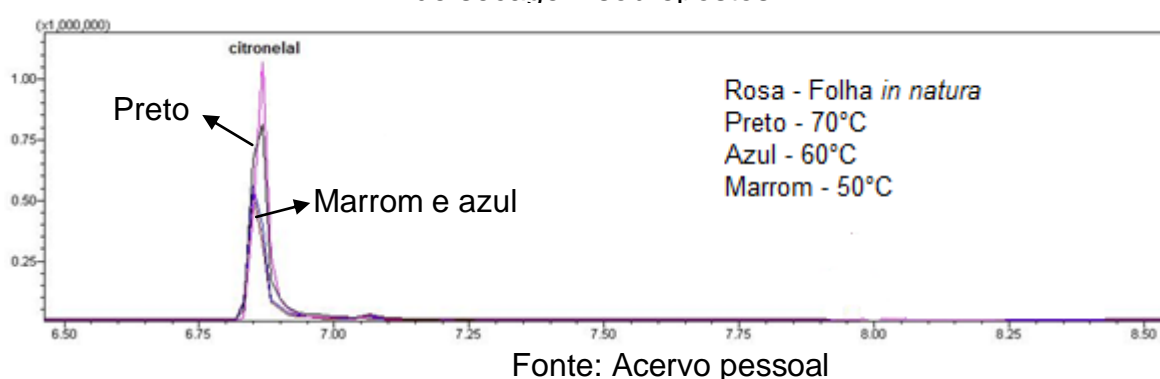
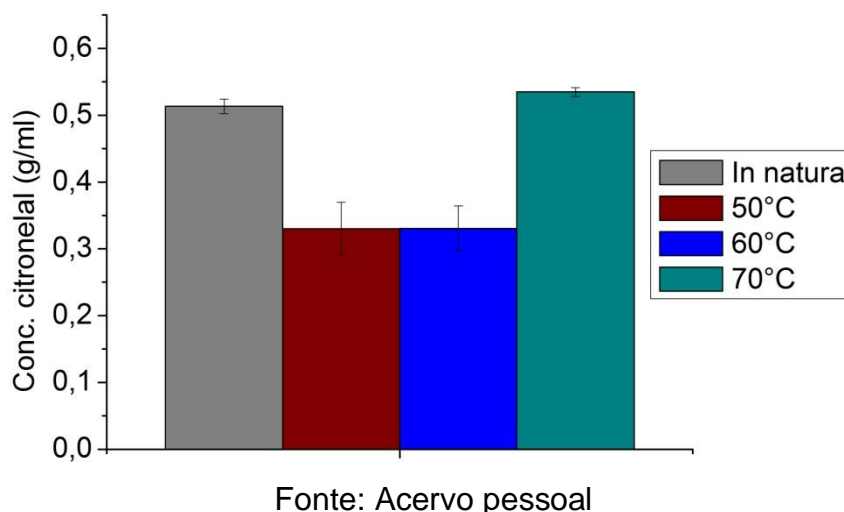


Figura 4.29: Concentração do citronelal (g/ml) no óleo extraído das folhas secas em relação à folha *in natura*



Nota-se que as concentrações obtidas para as folhas secas nas temperaturas de 70°C, de  $0,530 \pm 0,006$  g/ml, ficaram bem próximas da concentração obtida para a folha *in natura*, de  $0,51 \pm 0,01$ . Para as secagens a 50 e 60°C, as concentrações de citronelal mostraram uma diferença significativa em relação à folha *in natura*, sendo de  $0,33 \pm 0,04$  e  $0,33 \pm 0,03$  g/mL, respectivamente. Assim como

os percentuais de citronelal no óleo foram de 59% para a folha *in natura*, 62% em 70°C e 38% em 50 e 60°C. Os percentuais obtidos para a folha *in natura* e para 70°C estão próximos aos encontrados na literatura que variam de 65 a 85% (VITTI E BRITO, 2003), no entanto, para os tratamentos de secagem, em 50 e 60°C, o percentual obtido foi até 24% menor.

A redução mais acentuada no teor de citronelal nas temperaturas de 50 e 60°C não era esperada, uma vez que a deterioração na secagem está geralmente associada com o aumento da temperatura. A perda de citronelal pode ter ocorrido, pelo fato das folhas terem sido coletadas e armazenadas antes das extrações. Para que fosse usado um único lote de folhas nos ensaios de extração, as folhas *in natura* foram coletadas no dia 13/10 e armazenadas em freezer. Foi feita uma secagem a 70°C no dia seguinte, 14/10, e a extração do óleo realizada em seguida. Já para as folhas secas nas temperaturas de 50 e 60°C, as extrações foram realizadas nos dias 01/11 e 07/11, respectivamente. Como o teor de óleo não foi alterado pela secagem, é possível que o armazenamento tenha alterado a concentração de citronelal presente nas folhas, ou porque o tempo foi longo ou porque as condições não foram adequadas para a preservação deste constituinte.

Outra razão possível, é que na temperatura de 70°C a secagem tenha destruído as estruturas das células que retêm maior quantidade de citronelal, favorecendo a extração do óleo contido nas partes mais difíceis. Desta forma, o citronelal detectado no óleo extraído nas folhas *in natura* seria proveniente da fração de óleo mais “livre”, cuja extração é mais fácil. Por outro lado, esta fração do óleo também está sujeita a maiores perdas por volatilização durante a secagem. Assim, a redução no teor de citronelal observado nas temperaturas de 50 e 60°C poderia ser justificada pela volatilização, sendo que a 70°C a perda de citronelal por volatilização teria sido compensada pelo componente obtido a partir do óleo contido nas estruturas mais internas, que ficaram acessíveis pela secagem a temperatura mais alta.

A repetição dos testes e análises mais aprofundadas seriam necessárias para compreender a razão destes resultados.

## 5. CONCLUSÕES

A partir dos resultados obtidos pode-se concluir:

- O secador tipo cesto rotativo mostrou-se adequado para a secagem de folhas de eucalipto, já que permite a redução de umidade em valores considerados adequados para armazenamento, sem redução significativa do teor de óleo das folhas, de  $1,6 \pm 0,3\%$  em base úmida;
- O equipamento possibilita a secagem com boa reprodutibilidade de resultados;
- Para as condições investigadas no planejamento experimental, a velocidade do ar de secagem e a velocidade de rotação do cesto não influenciaram o processo de secagem, enquanto a temperatura do ar teve influência significativa no processo;
- As folhas de eucalipto apresentam alta variabilidade de tamanhos e formatos, sendo que as dimensões médias das folhas selecionadas para a secagem foram: comprimento médio de  $15 \pm 3$  cm, área projetada de  $15 \pm 3$  cm<sup>2</sup> e perímetro projetado  $33 \pm 3$  cm;
- A densidade *bulk* das folhas de eucalipto *in natura* é de  $0,14$  g/cm<sup>3</sup> e diminui para  $0,020$  g/cm<sup>3</sup> após a desidratação. As folhas sofrem enrijecimento ao serem desidratadas, o que, juntamente com o aumento de volume provocado pela expressiva redução da densidade *bulk*, dificulta a mistura no interior do secador. Assim, foi constatado que, para fornecer uma boa mistura e contato efetivo entre as fases, a carga máxima alimentada de folhas *in natura* não deve ultrapassar 10% do volume do cesto;
- Selecionando-se condições adequadas foi possível obter uma secagem homogênea, com diferenças máximas de 0,8% na umidade das folhas coletadas em diferentes posições do secador. O desempenho do cesto rotativo, em termos de homogeneidade, foi superior ao da estufa industrial, da secagem convectiva em bandejas e em leito fixo com percolação de ar, bem como do secador de tambor;
- Na avaliação da alteração da cor das folhas, constatou-se que a secagem não provocou o escurecimento; o tempo de secagem das folhas foi o fator

de influência na alteração da cor verde ( $a^*$ ); e para o amarelo ( $b^*$ ), os tratamentos de secagem não tiveram diferença significativa entre si, e aumentaram comparados ao valor obtido para a folha *in natura*;

- Foi observada a redução na concentração de citronelal nas folhas secas a 50 e 60 °C, mas não para a temperatura de 70°C;

Finalmente, conclui-se que o secador tipo cesto rotativo é eficiente em termos de homogeneidade na secagem das folhas de eucalipto, sendo superior às outras configurações de secagem avaliadas e proporcionando um produto de boa qualidade e homogêneo.

## 6. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

A fim de contribuir com a continuação da pesquisa iniciada neste trabalho, seguem algumas sugestões:

- Realizar a secagem de outras espécies de folhas ou outros materiais no secador tipo cesto rotativo, como sementes, por exemplo, para avaliar a eficiência da secagem de materiais que possuem formas geométricas definidas e também para materiais em que o conjunto encolhe no processo;

- Minimizar perdas de calor fornecido ao material, colocando um tampo no cesto, por exemplo;

- Projetar um secador rotativo para as folhas de eucalipto com dimensões maiores que o desenvolvido neste trabalho, a fim de verificar se há a melhora na movimentação das folhas no seu interior;

- Trabalhar com rotações abaixo de 4 RPM a fim de testar se há a influência desta na secagem;

- Avaliar a eficiência energética do secador;

- Refazer as medidas de concentração de citronelal no óleo em função da temperatura.

## 7. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ADAMIEC, Janusz; KAMÍNSKI, Wladyslaw; MARKOWSKI, Adam S.; STRUMILLO, Czeslaw. Drying of Biotechnological Products. In: MUJUMDAR, Arun S.. **Handbook of Industrial Drying**. 2. ed. Montreal: Marcel Dekker, 1995. Cap. 3. p. 589-1149.

ARRUDA, Edu Barbosa. **Comparação do desempenho do secador roto-fluidizado com o secador rotatório convencional: secagem de fertilizantes**. 2008. 204 f. Tese (Doutorado) - Curso de Engenharia Química, Universidade Federal de Uberlândia, Uberlândia, 2008.

BAKER, C. G. J. Cascading rotary dryers. **Advances in Drying**, Hemisphere, New York, Mujumdar A. S (ed). 1983. v. 2, Cap. 1 p. 1-51

BARROS, Cleide Bassani de; YABIKU, Helena Yuco. **Dados internacionais de Catalogação na Publicação**.

BICALHO, I. C.; DUARTE, C. R.; SILVÉRIO, B. C.; BARROZO, M. A. S. **Estudo experimental e de simulação da fluidodinâmica em secadores rotatórios com cascadeamento**. FEQ-UFU, Uberlândia, 2010.

BIZZO, Humberto R.; HOVELL, Ana Maria C.; REZENDE, Claudia M.. Óleos essenciais no Brasil: Aspectos gerais, Desenvolvimento e Perspectivas. **Química Nova**, Rio de Janeiro, v. 32, p.588-594, 2009.

BRAGA, Nazareno de Pina. **Influência na secagem o rendimento e na composição do óleo essencial das folhas de *Eucalyptus citriodora***. 181 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Química, Universidade de Campinas, Campinas, 2002.

BRUM, Luis Fernando Wentz. **Obtenção e avaliação de extratos de folhas de eucalipto (*Eucalyptus dives*) como potenciais antioxidantes em alimentos**. 2010. 135 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia de Alimentos, Universidade Federal De Santa Catarina, Florianópolis, 2010.

BUCHAILLOT, Amandine; CAFFIN, Nola; BHANDARI, Bhesh. Drying of Lemon Myrtle (*Backhousia citriodora*) Leaves: Retention of Volatiles and Color. **Drying Technology**, Brisbane, v. 27, n. 3, p.445-450, fev. 2009.

CAMPOS, Alessandro Torres. **Desenvolvimento e protótipo de secador de camada fixa para café (*Coffea arabica* L.), com sistema de revolvimento mecânico**. 78 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Agrícola, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, 1998.

CASTRO, N. E. A.; CARVALHO, G. .J.; CARDOSO, M. G.; PIMENTEL, F. A.; CORREA, R. M.; GUIMARÃES, L. G. L.. Avaliação do rendimento e dos constituintes químicos do óleo essencial de folhas de *Eucalyptus citriodora* Hook.

colhidas em diferentes épocas do ano em municípios de Minas Gerais. **Revista Brasileira de Plantas Mediciniais**, Botucatu, v. 10, p.70-75, 2008.

CORRÊA, Paulo César; AFONSO JUNIOR, Paulo César; MARTINS, Paula Melo; MELO, Evandro de Castro; Radunz, Lauri Lourenço. Modelo matemático para representação da higroscopicidade de plantas medicinais. **Revista Brasileira de Armazenamento**, Viçosa, v. 27, n. 1, p.8-15, 2002.

COSTA, Ariany Binda Silva. **Secagem convectiva de folhas de hortelã: análise baseada no ajuste de correlações empíricas, superfícies de respostas e redes neurais**. 109 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Química, Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2013.

CRAVEIRO, Afrânio Aragão; QUEIROZ, Danilo Caldas de. Óleos essenciais e química fina. **Química Nova**, Fortaleza, p.224-228, 20 nov. 1992.

DALEFFE, R. V.; FREIRE, J. T. Analysis of the fluid-dynamic behavior of fluidized and vibrofluidized bed containing glycerol. **Brazilian Journal of Chemical Engineering**, v. 21, n. 1, p. 35-46, jan./mar. 2004.

EICHOL, Eberson Diedrich; PERES, Wolmer Brod. Monitoramento da qualidade física de secagem de sementes de milho em secadores estacionários. **Revista Brasileira de Sementes**, Pelotas, v. 30, n. 2, p.57-64, 2008.

ERBAY, Zafer; ICIER, Filiz. Optimization of Drying of Olive Leaves in a Pilot-Scale Heat Pump Dryer. **Drying Technology**, Turkey, n. 27, p.416-427, 2009.

FILIPPIS, FLÁVIA MOLARDI de. **Extração com CO2 supercrítico de óleos essencial de Honsho e Ho-sho- experimentos e modelagem**. 2001. 114f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Química, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, 2001.

GASPARIN, Priscila Pigatto. **Secagem de Mentha piperita em leito fixo utilizando diferentes temperaturas e velocidades de ar**. 2012. 82 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Agrícola, Universidade Estadual do Oeste do Paraná, Cascavel, 2012.

GASPARIN, P. P.; ALVES, N. C. C.; CHRIST, D.; COELHO, S.R.M. Qualidade de folhas e rendimento de óleo essencial em hortelã pimenta (Mentha x Piperita L.) submetida ao processo de secagem em secador de leito fixo. **Revista Brasileira de Plantas Mediciniais**, Campinas, v. 16, n. 2, p.337-344, 2014.

GONELI, André Luís Duarte; VIEIRA, Maria do Carmo; VILHASANTI, Henrique da Cruz Benitez. Modelagem matemática e difusividade efetiva de folhas de aroeira durante a secagem. **Pesquisa Agropecuária Tropical**, Dourados, v. 44, n. 1, p.56-64, 2014.

GOUVEIA, J. P. G.; ALMEIDA, F. A. C.; FARIAS, E. S.; SILVA, M. M.; CHAVES, M. C. V.; REIS, L. S. Determinação das curvas de secagem em frutos de cajá.

**Revista Brasileira de Produtos Agroindustriais**, Campina Grande, n. 1, p. 65-68, 2003.

HANDPRINT. **Modern color models**. Disponível em: <<http://handprint.com/HP/WCL/color7.html#CIELAB>>. Acesso em: set. 2014.

KAYA, Ahmet; AYDIN, Orhan. An experimental study on drying kinetics of some herbal leaves. **Energy Conversion And Management**, Turkey, v. 50, n. 1, p.118-124, 2009.

Keey, R.B., **Introduction to Industrial Drying Operations**, 1 ed, Pergamon Press, New York, 1978.

PARK, Kil Jin Brandini; ALONSO, Luís Felipe Toro; CORNEJO, Félix Emilio Prado; FABRO, Inácio Maria Dal; PARK, Kin Jin. SELEÇÃO DE SECADORES: FLUXOGRAMA. **Revista Brasileira de Produtos Agroindustriais**, Campina Grande, v. 9, n. 2, p.179-202, 2007.

LA CRUZ, Mari Gema Fontelles De. O uso de óleos essenciais na terapêutica. Instituto Centro de Vida.

LIMA, Oswaldo Curty da Motta; PEREIRA, Nehemias Curvelo; MENDES, Elisabete Scolin. Análise da cinética de secagem de papel artesanal com ar ambiente em convecção forçada. **Acta Scientiarum**, Maringá, v. 24, n. 6, p.1665-1671, 2002.

LIMA, Renata Aquino de Brito. **Análise da secagem convectiva de folhas de manjeriço**. 2013. 169 f. Tese (Doutorado) - Curso de Engenharia Química, Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2013.

MARCHESE, J. A.; FIGUEIRA, G. M.. O uso de tecnologias pré e pós-colheita e boas práticas agrícolas na produção de plantas medicinais e aromáticas. **Revista Brasileira de Plantas Mediciniais**, Paulínia, v. 7, n. 3, p.86-96, 2002.

MARTINAZZO, Ana Paula. **Secagem, armazenamento e qualidade das folhas de *Cymbopogon citratus* (D. C.) Stapf**. 2006. 156 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Agrícola, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, 2006.

MARTINS, Paula Melo. **Influência de parâmetros de secagem e armazenamento sobre princípios ativos de interesse de duas espécies medicinais: guaco (*Mikania glomerata* Spreng.) e calêndula (*Calendula officinalis* L.)**. 2005. 155 f. Tese (Doutorado) - Curso de Engenharia Agrícola, Universidade Estadual do Norte Fluminense, Campos dos Goytacazes, 2005.

MENEZES, Maraísa Lopes de; STRÖHER, Ana Paula; PEREIRA, Nehemias Curvelo; BARROS, Sueli Teresa Davantel. Análise da cinética e ajustes de modelos matemáticos aos dados de secagem do bagaço do maracujá-amarelo. **Engevista**, Maringá, v. 15, n. 2, p.176-186, 2013.



MEZZOMO, N. **Óleo de amêndoa de pêssego: avaliação da técnica de extração, da qualidade dos extratos e parâmetros para ampliação de escala.** Dissertação (Mestrado) – Curso de Engenharia de Alimentos, Universidade Federal de Santa Catarina, 136 p. Florianópolis, 2008.

MOCHI, Vanessa Trevizan. **Efeito da temperatura de secagem no rendimento do óleo essencial e teor de 1, 8-cineol presentes nas folhas de Eucalyptus camaldulensis.** 2005. 91 f. Dissertação (Mestrado) – Curso de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2005.

MUJUMDAR, Arun S. **Handbook of industrial drying.** 2 Ed. New York: Marcel Dekker, 1995. v.1. 742 p.

NUNES, Cintia Silva. **Estabilidade dimensional e modificações químicas da madeira termorretrificada de *Corymbia citriodora* (Hook.) K.D. Hill & L.A.S. Johnson.** 2009. 32 f. Monografia (Trabalho de Graduação) - Curso de Engenharia Florestal, Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro, Seropédica, 2009.

PARCKERT, Evely Degraf Terra. **Processamento de Folhas de Nim: Inativação Enzimática e Secagem.** 2009. 79 f. Dissertação (Mestrado) – Programa de Pós-graduação em Engenharia Química, Universidade Federal de Uberlândia, Uberlândia, 2009.

PAPADAKIS, S. *et al.* Scale-up of cascading Rotary dryers. **Drying technology**, v. 12, n 1-2, p. 259-277, 1994.

PERAZZINI, Hugo. **Secagem de sólidos porosos granulares.** 2013. 192 f. Tese (Doutorado) - Curso de Engenharia Química, Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2013.

PERAZZINI, Hugo. **Secagem de resíduos cítricos em secador rotativo.** 2011. 104 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Engenharia Química, Universidade Federal de São Carlos, São Carlos, 2011.

PIN, K. Y.; CHUAH, T. G.; RASHIH, A. Abdull; C. L. Law , M. A. Rasadah & T. S. Y. Choong. Drying of Betel Leaves (*Piper betle* L.): Quality and Drying Kinetics. **Drying Technology: An International Journal**, Malaysia, v. 27, p.149-155, 2009.

PRINS, Cláudia L.; VIEIRA, Ivo J. C.; FREITAS, Silvério. C.. Growth regulators and essential oil production. **Brazilian Society Of Plant Physiology**, Campos Dos Goytacazes, p.91-102, 27 jul. 2010.

RADUNZ, Lauri Lourenço *et al.* Influência da temperatura do ar de secagem na quantidade do óleo essencial de guaco (*Mikania glomerata* Sprengel). **Revista Brasileira de Armazenamento**, Viçosa, v. 28, n. 2, p.41-45, 2003.

RAMALLO, L. A. *et al.* Moisture diffusivity, shrinkage, and apparent density variation during drying of leaves at high temperatures. **International Journal of Food Properties**, v. 4, p. 163-170, 2001.

RAVOL, D; BRIENS, C. L.; CHABAGNO, J. M. The design of flights in rotary dryers. **Powder Technology**, v. 121, n. 2-3, p. 230-238, 2001.

RIZZINI, Carlos Toledo. **Árvores e madeiras úteis no Brasil: Manual de dendrologia brasileira**. 2. ed. São Paulo: Edgard Blucher Ltda, 1985. 296 p.

ROCHA, Ronicely Pereira da. **Avaliação do e da composição do óleo essencial de *Cymbopogon citratus* e *Thymus vulgaris* submetidos a processos de secagem e armazenamento**. 2011. 176 f. Tese (Doutorado) - Curso de Engenharia Agrícola, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, 2011.

SZUMNY, Antoni; FIGIEL, Adam; GUTIÉRREZ-ORTÍZ, Antonio. Composition of rosemary essential oil (*Rosmarinus officinalis*) as affected by drying method. **Journal Of Food Engineering**. Polônia, p. 253-260. 2010.

SILVA, Francieli da. **Avaliação do teor e da composição química do óleo essencial de plantas medicinais submetidas a processos de secagem e armazenamento**. 2005. 168 f. Dissertação (Mestrado) - Programa de Pós Graduação em Engenharia Agrícola, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2005.

TARHAN, Sefa; TELCI, Isa; TUNCAY, M. Taner, POLATCI, Hakan. Product quality and energy consumption when drying peppermint by rotary drum dryer. **Industrial Cops And Products**, Turkey, n. 32, p.420-427, 2010.

TOSELLO, André. Ensaio sobre a secagem de produtos agrícolas. **Boletim Técnico da Divisão de Experimentação e Pesquisas**, Campinas, v. 6, n. 2, 1946.

Van ARSDEL, W. B.; COPLEY, M. J.; MORGAN, A. I. Drying phenomena. In: ----. **Food dehydration methods and phenomena**. 2 ed., Wesport, AVI publ., 1973. v.1, p.22-57.

VIEIRA, Israel Gomes. **Estudo de caracteres silviculturais e de produção de óleo essencial de progênies de *Corymbia citriodora* (Hook) K.D.Hill & L.A.S. Johnson procedente de Anhembi SP - Brasil**, Ex. Atherton QLD - Austrália. 2004. 100 f. Dissertação (Mestrado) - Universidade de São Paulo, Piracicaba, 2004.

VITTI, Andrea M. Silveira; BRITO, José Otávio. Avaliação do rendimento e do teor de citronelal do óleo essencial de procedências e raças locais de *Eucalyptus citriodora*. **Scientia Forestalis**, v. 56, p.145-154, 1999.

VITTI, Andrea M. Silveira; BRITO, José Otávio. **Óleo essencial de eucalipto**. Documentos Florestais, n. 17, 2003.