

**UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI PADOVA**

DIPARTIMENTO DI INGEGNERIA INDUSTRIALE

TESI DI LAUREA IN INGEGNERIA CHIMICA

CLASSE 10 INGEGNERIA INDUSTRIALE

(DM 509/99)

**STUDIO SPERIMENTALE DEL CAMPIONAMENTO DI  
POLVERI COESIVE**

***Relatore: Ing. Andrea Santomaso***

***Laureando: Andrea Pitton***

ANNO ACCADEMICO 2011-2012



# Indice

<b>INTRODUZIONE</b> .....	5
---------------------------	---

## Capitolo 1

<b>STATO DELL'ARTE DEL CAMPIONAMENTO TRAMITE SONDE</b> .....	7
--	---

1.1 LA CARATTERIZZAZIONE DI UNA MISCELA MEDIANTE SONDE .....	7
--	---

1.2 LE SONDE THIEF .....	8
--------------------------	---

1.3 LE SONDE TUBOLARI .....	9
-----------------------------	---

1.4 LE SONDE COASSIALI .....	11
------------------------------	----

1.5 LA SONDA ASPIRATA.....	13
----------------------------	----

## Capitolo 2

<b>SCELTA E CAMPIONAMENTO DELLE POLVERI</b> .....	15
---	----

2.1 CARATTERISTICHE DELLE SINGOLE PARTICELLE.....	15
---	----

2.1.1 Dimensione.....	16
-----------------------	----

2.1.2 Forma.....	16
------------------	----

2.1.3 Densità .....	17
---------------------	----

2.2 SCELTA DELLE POLVERI DA UTILIZZARE.....	17
---	----

2.2.1 Angolo di riposo.....	18
-----------------------------	----

2.2.2 Densità apparente .....	19
-------------------------------	----

2.2.2.1 Densità versata.....	20
------------------------------	----

2.2.2.2 Densità battuta .....	21
2.2.3 Rapporto di Hausner .....	22
2.3 STRUMENTAZIONE .....	23
2.3.1 La sonda triangolare .....	24
2.3.2 La sonda semicilindrica .....	27

## Capitolo 3

<b>LA SPERIMENTAZIONE</b> .....	29
3.1 MECCANISMO DI TRASMISSIONE DEGLI SFORZI ALL'INTERNO DELLA SONDA.....	29
3.2 EFFICIENZA DI CAMPIONAMENTO DELLE SONDE SPERIMENTALI.....	31
3.2.1 La sonda triangolare .....	32
3.2.2 La sonda semicilindrica .....	34
3.2.3 Confronto fra le due tipologie di sonde .....	35
3.3 VARIAZIONE DELLA DENSITÀ DELLA POLVERE IN FUNZIONE DELL'ALTEZZA DEL LETTO CAMPIONATO .....	36
<b>CONCLUSIONI</b> .....	39
<b>RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI</b> .....	41

# Introduzione

I materiali granulari sono presenti nella vita di tutti i giorni sotto forma di alimenti, prodotti farmaceutici, detersivi e cosmetici solo per citare alcuni esempi. Inoltre, gran parte dei moderni processi industriali, prevede l'impiego di materiali solidi sotto forma di polveri fini o granulari: nella fabbricazione di plastiche, di vetri, di fertilizzanti e di prodotti farmaceutici infatti, l'utilizzo di miscele di polveri è ampiamente diffuso.

In particolare, facendo riferimento all'industria farmaceutica, è di fondamentale importanza poter valutare il grado di omogeneità raggiunto dalle polveri in seguito al processo di miscelazione, prima che queste vengano impiegate nei processi produttivi. Il tutto è diventato rigoroso dopo che, negli USA, è stata emessa la sentenza Barr del 1993, la quale stabilisce che le compagnie farmaceutiche devono obbligatoriamente dimostrare l'uniformità delle miscele di polveri utilizzate per produrre medicinali. A tal fine quindi è necessario prelevare, all'interno del miscelatore, dei campioni di polvere successivamente sottoposti ad analisi, in modo da determinarne la composizione. La tecnica di campionamento più diffusa in ambito industriale è quella che prevede l'impiego di opportune sonde ed il presente lavoro di Tesi pertanto, si focalizzerà sul campionamento di materiali granulari coesivi tramite l'utilizzo di queste sonde.

In conclusione, la presenza di polveri o materiali granulari nei più importanti campi industriali, ha fatto crescere l'interesse verso la *particletechnology*, espressione impiegata per descrivere quella branca dell'ingegneria che si occupa della produzione e del trattamento delle polveri.



# Capitolo 1

## Stato dell'arte

### del campionamento tramite sonde

In questo capitolo vengono presentati alcuni aspetti generali relativi alle metodologie di campionamento delle polveri. La caratterizzazione delle miscele, in particolare nell'industria farmaceutica, è un aspetto diventato di fondamentale importanza in seguito alla sentenza Barr (1993). Tale provvedimento giurisdizionale prescrive alle compagnie farmaceutiche di dimostrare il grado di omogeneità spaziale delle miscele di polveri impiegate nella produzione dei medicinali. Le sonde finora utilizzate in ambito industriale non consentono di ottenere campioni rappresentativi del reale grado di miscelazione che caratterizza il sistema, perché risultano particolarmente invasive e quindi disturbano il letto granulare alterando il campione prelevato. Risulta quindi chiaro quali siano le ragioni che spingono la ricerca e lo studio in tale ambito.

#### 1.1 La caratterizzazione di una miscela mediante sonde

Lo scopo del campionamento è quello di prelevare una determinata quantità di miscela che sia rappresentativa della massa totale e che consenta quindi di caratterizzare il sistema granulare in esame. Solitamente si prelevano dei campioni di dimensioni dell'ordine dei milligrammi in modo da riuscire a rappresentare con un certo grado di accuratezza l'intero sistema.

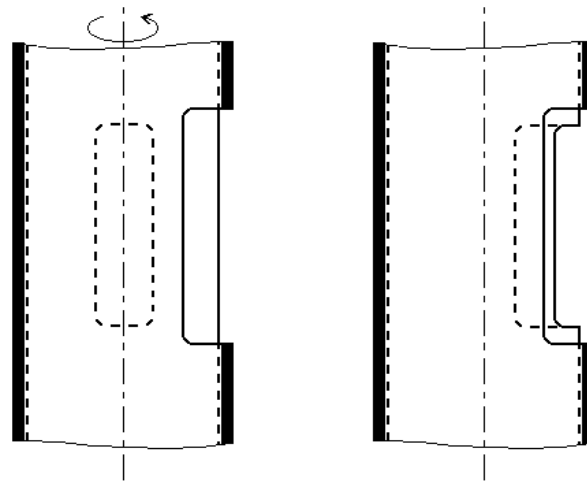
Allen (1990) enuncia due regole generali che consentono un buon campionamento ma che non vengono rispettate qualora il campionamento preveda l'utilizzo di sonde:

- 1) la polvere deve essere prelevata quando è in movimento;
- 2) il campione deve poter essere raccolto uniformemente lungo l'intero sistema e durante l'intero processo.

Inoltre pochi autori forniscono indicazioni sul numero di campioni da prelevare; da un punto di vista statistico, l'aumento del numero di campioni migliora la stima della distribuzione reale delle composizioni della miscela. Risulta però necessario raggiungere un compromesso tra la rappresentatività della popolazione campione e l'esigenza di effettuare pochi prelievi sia per ragioni di tempo che economiche legate al consumo di materiale spesso costoso. Il numero di campioni prelevati non deve comunque essere troppo elevato per non alterare la struttura della miscela analizzata.

## 1.2 La sondathief

Una tipica sonda *thief* è costituita da due cilindri concentrici, quello interno è dotato di una o più cavità che vengono chiuse o aperte mediante opportuna rotazione di quello esterno. Si consente il prelievo del materiale quando le aperture del cilindro esterno sono posizionate in corrispondenza delle cavità di quello interno (Figura 1.1).



**Figura 1.1** Meccanismo di apertura delle cavità utilizzato nelle sonde thief.

Le sonde che presentano più cavità allineate verticalmente lungo il corpo della sonda vengono dette a campionamento laterale (*side sampling*), mentre le sonde dotate di una singola cavità posta alla loro base sono definite a campionamento d'estremità (*end sampling*). In entrambi i casi, la sonda è introdotta nel letto di polvere con le cavità chiuse e solo una volta completato l'inserimento, le cavità vengono aperte mediante rotazione del cilindro esterno. Si permette così l'afflusso di polvere all'interno della



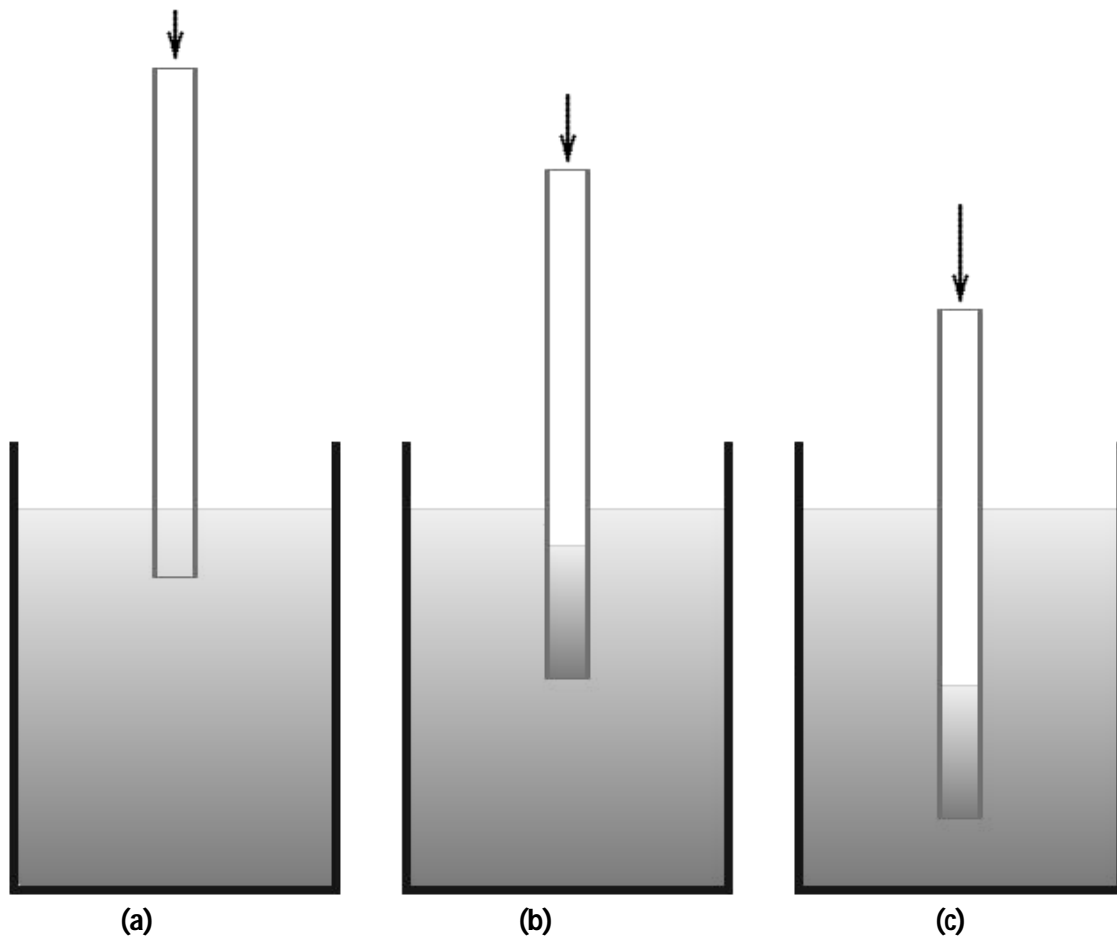
sonda e le cavità vengono richiuse solo prima di estrarre la sonda dal letto di polvere. Questo tipo di campionamento risulta particolarmente invasivo ed i principali svantaggi legati a questo tipo di approccio sono:

- l'effetto di trascinamento dei vari strati del letto di polvere che è imputabile all'inserimento della sonda la quale modifica sensibilmente la disposizione delle particelle e quindi la configurazione del letto;
- le particelle di dimensione maggiore fluiscono più facilmente all'interno della cavità della sonda perché più scorrevoli, si assiste quindi nella fase di riempimento ad un flusso di polvere non omogenea;
- i materiali coesivi sono difficilmente sondabili a causa della formazione di un tappo, dovuto alla loro compattazione e che impedisce il campionamento della polvere;
- è possibile raccogliere un numero limitato di campioni in ogni operazione.

Questi quattro aspetti compromettono l'efficienza del campionamento e comportano la raccolta di campioni che presentano una composizione differente rispetto alla composizione del sistema indisturbato nel punto di prelievo.

### **1.3 La sonda tubolare**

Al fine di migliorare l'efficienza dell'operazione di campionamento e ridurre il disturbo del letto provocato dall'inserimento della sonda, sono stati sviluppati dei modelli di sonde alternativi per il campionamento di polveri coesive. In un precedente lavoro di Tesi (Zampieri, 1999) si è sviluppato la sonda tubolare che nasce dalla seguente osservazione: quando si inserisce in un letto di polvere un tubo di materiale trasparente, si può osservare che la polvere fluisce al suo interno attraverso l'estremità inferiore fino ad un punto in cui il livello della polvere comincia progressivamente a diminuire rispetto al livello del letto circostante (Figura 1.2c). Si assiste alla formazione di un tappo costituito da polvere compattata che impedisce l'ulteriore afflusso di materiale all'interno del tubo; se si procede con l'inserimento della sonda si verifica solo la compattazione e lo spostamento degli strati di letto sottostanti.



**Figura 1.2** *Comportamento della polvere nelle sonde tubolari.*

*Fonte: Barbiero N., 2000.*

Nel caso in cui il letto sia costituito da polvere non eccessivamente scorrevole, il tappo sostenendo il peso del materiale soprastante consente di prelevare un campione di polvere durante l'estrazione della sonda tubolare. Si indica con il termine “carota” la polvere contenuta all'interno del tubo. Per caratterizzare le prestazioni delle sonde Zampieri (1999) definisce il rendimento di campionamento, che è un indice del grado di impaccamento che introduce la sonda quando viene inserita nel letto di polvere in esame.

Si definisce rendimento di campionamento ponderale il seguente rapporto:

$$\eta_{ponderale} = \frac{m_e}{m_t} \cdot 100 \quad (1.1)$$

dove:

$m_e$  [g] rappresenta la massa di polvere effettivamente estratta con la sonda e

$m_t$  [g] indica la massa teoricamente estraibile.

Quest'ultima, nel caso per esempio di sonda semicilindrica, si può determinare attraverso la seguente relazione:

$$m_t = \frac{1}{2} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot D^2 \cdot H \cdot \rho \quad (1.2)$$

dove

$D$  [cm] indica il diametro della sonda e

$H$  [cm] rappresenta l'altezza del letto campionato.

Quantificare il grado di compattazione della polvere attraverso questo indice risulta però poco rappresentativo dal momento che è una grandezza fortemente influenzata dal metodo impiegato per valutare la densità  $\rho$  [g/cm<sup>3</sup>] della polvere.

Si definisce allora il rendimento di carotaggio dato dal rapporto tra l'altezza estratta dalla sonda,  $H_e$  [cm], e quello teoricamente estraibile in assenza di compattazione,  $H_t$  [cm]:

$$\eta_{\text{carotaggio}} = \frac{H_e}{H_t} \cdot 100 \quad (1.3)$$

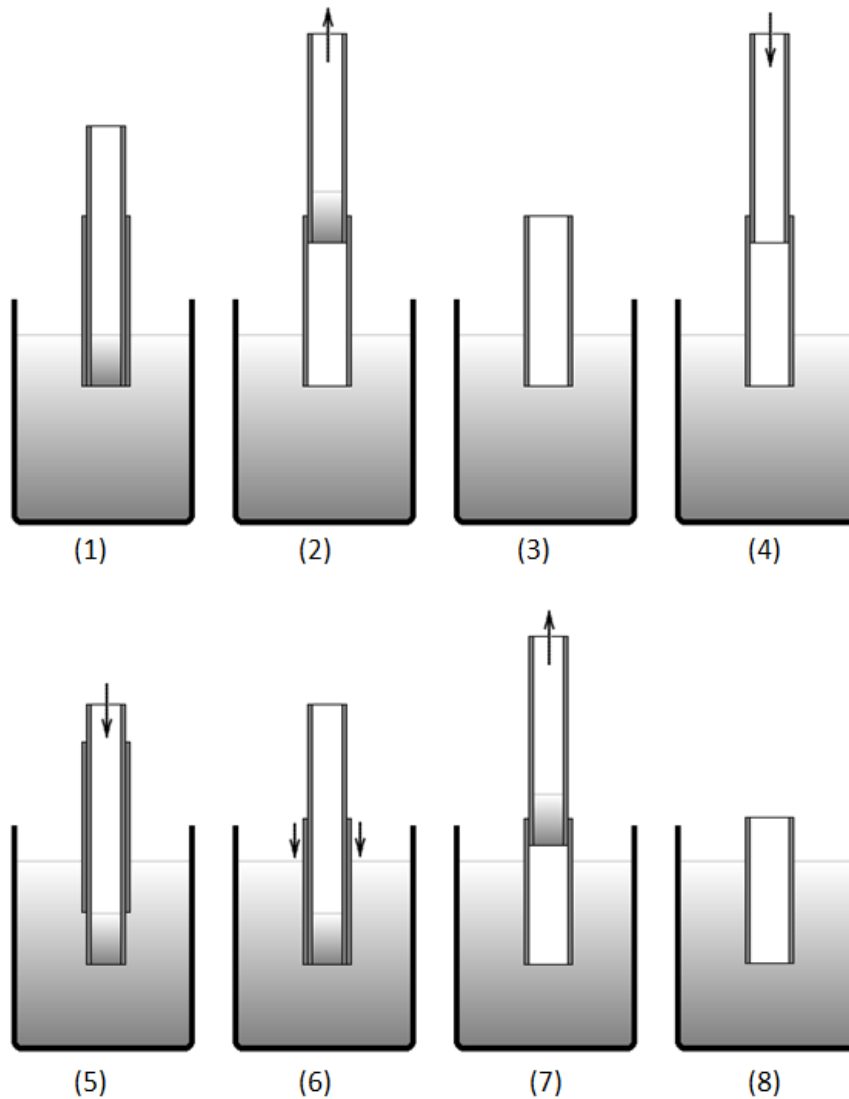
Il limite principale delle sonde tubolari è che la formazione del tappo impedisce di raccogliere carote superiori ad una determinata altezza. Se si riuscisse ad impedire la formazione del tappo, le sonde tubolari rappresenterebbero un'interessante alternativa alle sonde *thief*. Nel § 1.4 viene descritto un nuovo prototipo di sonda che per le modalità di impiego consente di ridurre la formazione del tappo di polvere.

## 1.4 La sonda coassiale

La sonda coassiale è in grado di campionare solo polveri sufficientemente coesive, per le quali le forze di adesione, tra la polvere e la parete della sonda, sono tali da impedire lo svuotamento della sonda stessa nella fase di estrazione dal letto. È costituita da due

tubi coassiali: il tubo interno preleva la carota mentre il tubo esterno preserva la struttura del letto di polvere nella fase di campionamento. Si procede introducendo parzialmente la sonda nel letto ed estraendo la carota attraverso il tubo interno. Il campionamento successivo riprende alla profondità in cui è stato interrotto il campionamento precedente

Il principio di funzionamento della sonda coassiale è riportato in Figura 1.3



**Figura 1.3** Rappresentazione schematica del principio di funzionamento della sonda coassiale:(1) introduzione parziale della sonda nel letto; (2) e (3) estrazione della prima carota mantenendo il tubo esterno fermo all'interno del letto; (4) reinserimento del tubo interno; (5) nuovo carotaggio parziale; (6) ulteriore abbassamento del tubo esterno; (7) e (8) estrazione della seconda carota. Fonte: Barbiero N., 2000.

Per aumentare il rendimento di queste sonde è necessario, per un dato tipo di polvere e per una determinata altezza del letto, determinare il numero ottimale di prelievi.

Il limite principale di questa sonda è legato al fatto che per letti di una certa altezza è necessario estrarre in successione un numero elevato di carote, rendendo complicata l'operazione di campionamento.

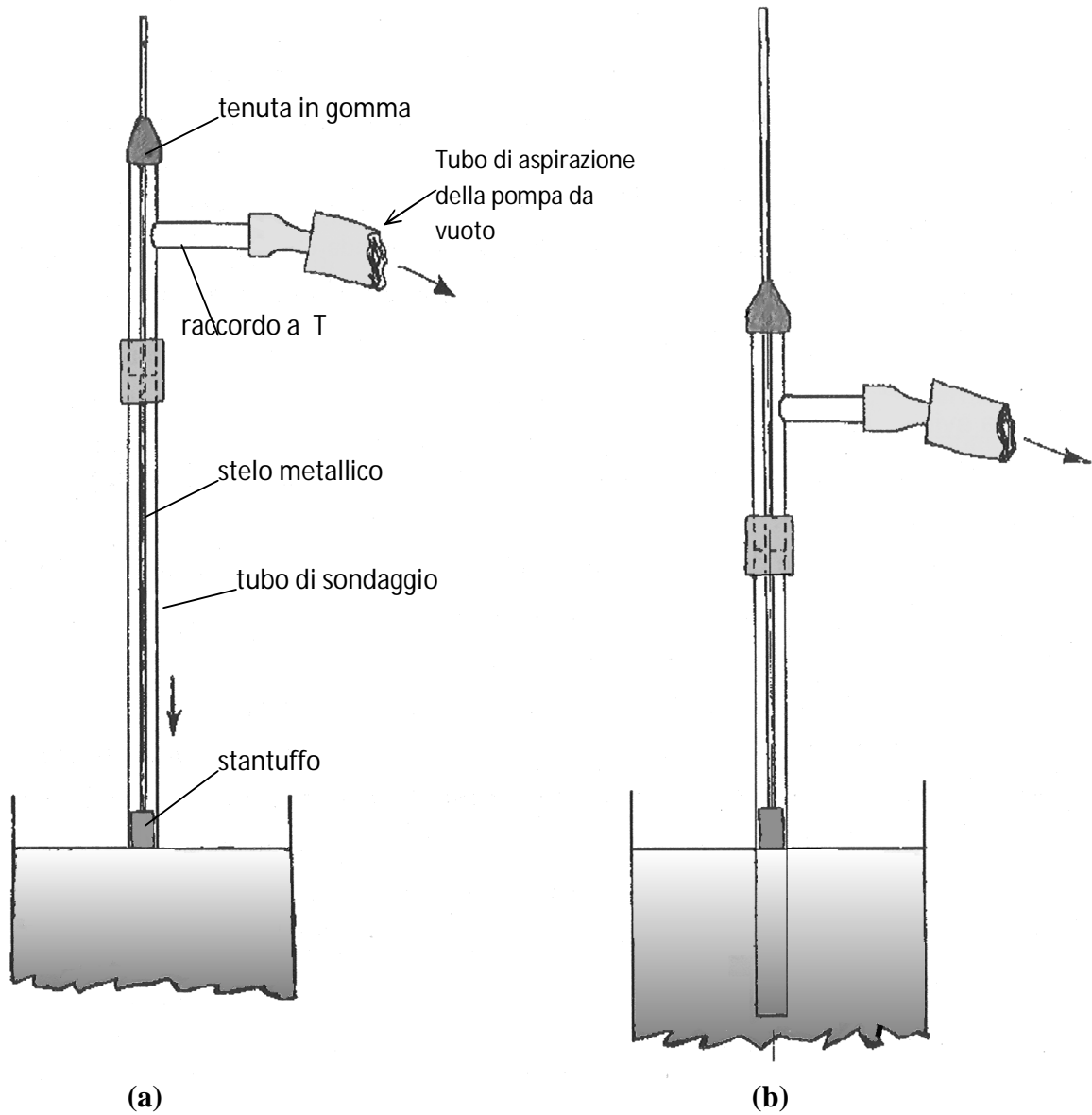
## **1.5 La sonda aspirata**

La sonda aspirata sfrutta la forza di trascinamento esercitata dall'aria aspirata dalla pompa da vuoto alla quale la sonda è collegata attraverso un raccordo a T. L'aria contenuta nel letto entra nel tubo di sondaggio e trascina con sé le particelle di polvere verso l'alto. In questo modo si riesce a mantenere la porosità della carota al valore originale e prevenire la formazione del tappo, perché diminuisce la forza necessaria allo scorrimento progressivo della carota verso l'alto. La sonda aspirata è rappresentata in Figura .1.4

Per campionare il letto di polvere, la sonda viene inizialmente posizionata con lo stantuffo appoggiato sul pelo libero del sistema granulare; in seguito, la sonda viene progressivamente introdotta nel letto di polvere, mentre lo stantuffo deve rimanere sempre in prossimità della superficie (Figura .1.4b).

Rispetto alla sonda coassiale, questa sonda consente di campionare anche polveri non coesive.

Tale tipologia di sonda potrebbe non essere adatta per profondità di campionamento superiori a 100-150 cm, che impedirebbero all'aria di fluire attraverso la sonda con una velocità sufficiente a trascinare con sé le particelle di polvere; le elevate perdite di carico incontrate dall'aria lungo il percorso che deve compiere potrebbero quindi compromettere l'esito del campionamento.



**Figura 1.4** Rappresentazione schematica (a) della sonda aspirata e (b) del relativo funzionamento. Fonte: Zampieri S., 1999.

# Capitolo 2

## Scelta e campionamento delle polveri

Obiettivo di questo capitolo è quello di descrivere le procedure che permettono di caratterizzare le polveri impiegate durante la fase di sperimentazione ed i metodi con cui essa è stata condotta.

Il prelievo di questi dipende infatti, oltre che dalla tecnica di campionamento usata, anche dalle proprietà delle polveri stesse e, fra le più importanti, vanno citate quelle relative allo scorrimento, ovvero:

- l'angolo di riposo,
- la densità battuta,
- la densità versata,
- il rapporto di Hausner.

Questi parametri, inoltre, consentono di classificare le polveri.

Le proprietà di una polvere sono strettamente legate alle caratteristiche delle particelle di cui essa è composta e, proprio per questo motivo, si descriveranno tali caratteristiche.

### 2.1 Caratteristiche delle singole particelle

Le caratteristiche delle singole particelle che influenzano maggiormente le proprietà di una polvere sono:

- la dimensione,
- la forma
- la densità

### 2.1.1 Dimensione

Normalmente la descrizione della dimensione di una particella è effettuata per mezzo di un diametro equivalente di cui esistono tre definizioni:

- a) *diametro della sfera equivalente*, ovvero il diametro di una sfera avente una caratteristica in comune (volume, velocità di sedimentazione) con la particella,
- b) *diametro del cerchio equivalente*, ovvero il diametro di un cerchio avente una caratteristica in comune (area, perimetro) con la particella,
- c) *diametro statistico* che si ottiene seguendo una procedura numerica (misuro più volte una dimensione lineare parallela ad una direzione fissata facendone poi la media).

Per convenzione la dimensione della particella è espressa in diverse unità di misura a seconda del range dimensionale, per esempio:

- i materiali granulari sono misurati in pollici o in millimetri,
- le particelle fini fanno riferimento alla dimensione della maglia del setaccio (luce libera),
- le particelle ultra fini sono spesso descritte in termini di area superficiale per unità di massa [ $m^2/g$ ].

### 2.1.2 Forma

Essa tende ad influenzare molte proprietà della polvere quali, per esempio, la densità del sistema e la scorrevolezza dello stesso. Per la sua analisi sono stati proposti numerosi metodi (Allen, 1990) e su tutti vanno ricordate:

- *le descrizioni qualitative* che però non forniscono alcun valore numerico da poter utilizzare in specifici calcoli od equazioni,
- *i coefficienti di forma* ovvero dei numeri adimensionali che esprimono di quanto una particella si discosta dalla forma sferica,
- *i fattori di forma* anch'essi dei numeri adimensionali derivanti dalla combinazione di diverse definizioni della dimensione della particella e
- *gli indici di forma*, definiti dal rapporto fra due diversi diametri equivalenti. Essi venivano utilizzati soprattutto prima dell'avvento delle



tecniche elettroniche e dei computer quando cioè, i fattori di forma avevano una scarsa applicazione nell'analisi delle polveri reali.

### 2.1.3 Densità

La densità è data dal rapporto tra la massa e il volume della particella. A seconda di come è misurato il volume, si possono avere i seguenti tipi di densità:

- a) *densità reale*, dove il volume esclude sia i pori aperti che quelli chiusi. Questa rappresenta quindi la densità del materiale di cui è costituita la particella, quindi, per sostanze chimiche pure, la si trova in letteratura.
- b) *densità apparente*, dove il volume include i pori chiusi, i pori aperti e le bolle di gas all'interno della stessa.
- c) *densità effettiva o aereodinamica*, dove il volume include sia i pori aperti che quelli chiusi. Normalmente l'utilizzo di questo particolare parametro è limitato al trasporto pneumatico ed alla fluidizzazione.

## 2.2 Scelta delle polveri da utilizzare

Per caratterizzare le sonde sviluppate in laboratorio, si è realizzato un letto costituito da un unico strato di lattosio monoidrato ( $48 \mu\text{m} < d_p < 72 \mu\text{m}$ ) di un'altezza  $H$  pari a 15 cm, il quale era già disponibile in laboratorio. L'impiego di tale materiale è particolarmente interessante perché è uno degli eccipienti più impiegati nei prodotti dell'industria farmaceutica. Le proprietà del lattosio monoidrato, come accennato nel paragrafo introduttivo, sono state valutate in termini di:

- angolo di riposo
- densità apparente
- rapporto di Hausner

Qui di seguito verranno riportate brevemente le definizioni di questi termini che rivestono una grande importanza nella classificazione e nella distinzione delle varie polveri.

### 2.2.1 Angolo di riposo

Si definisce angolo di riposo l'angolo formato tra la superficie libera di un cumulo di polvere ed il piano orizzontale sul quale la polvere stessa viene versata. Per la misura di questo indice di scorrevolezza, si utilizza una tramoggia conica con diametro di scarico di apertura di 5 mm, collocata ad una altezza di 2.5 cm rispetto al piano e si effettuano due prove per ciascuna tipologia di polvere. La prova consiste nel:

- 1) versare la polvere nella tramoggia, in modo tale da formare un cono sopra il foglio sul quale è disegnato un reticolo costituito da una serie di cerchi concentrici di raggi noti,
- 2) far coincidere il fuoco dei cerchi concentrici con il centro di apertura della tramoggia,
- 3) valutare il raggio in 8 punti distinti della circonferenza delimitata dalla polvere versata e
- 4) calcolare un raggio medio mediante il quale si risale alla tangente dell'angolo di riposo.

L'altezza del tronco di cono è pari a 2.5 cm ed utilizzando la relazione seguente

$$\tan \alpha = \frac{2h}{(D-d)}, \quad (2.1)$$

dove :

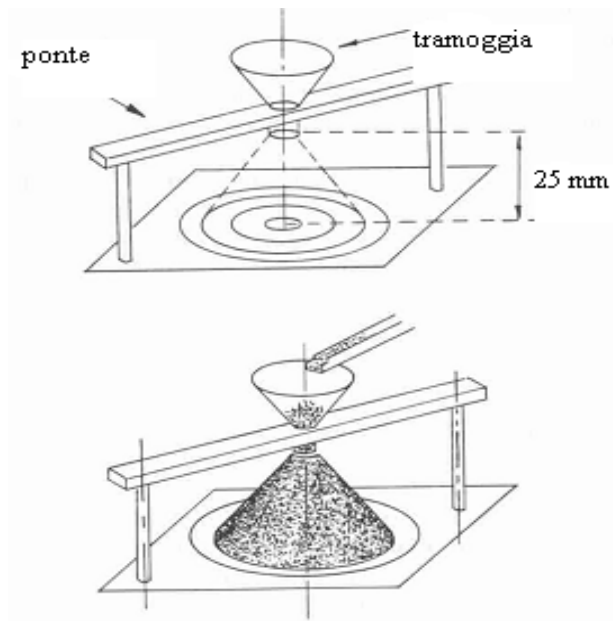
$h$  [cm] è l'altezza del tronco di cono,

$D$  [cm] è il diametro della base del tronco e

$d$  [cm] è il diametro del foro della tramoggia,

risalgo alla tangente dell'angolo di riposo.

In Figura 2.1 è schematizzata l'apparecchiatura impiegata nella misura dell'angolo di riposo.



**Figura 2.1** Determinazione dell'angolo di riposo statico. Fonte: Svarovsky, 1987.

### 2.2.2 Densità apparente

La densità apparente di un materiale granulare è data dal rapporto tra la massa della polvere ed il volume da essa occupato; come già detto in precedenza, nella definizione del volume sono inclusi sia i pori aperti e chiusi delle particelle, sia le bolle di gas che occupano i vuoti interparticellari. Un metodo molto semplice per misurare la densità apparente consiste nel pesare un contenitore di volume noto,

La densità del letto di polvere  $\rho_b$  [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ] si definisce come:

$$\rho_b = \rho_s(1 - \varepsilon) + \rho_a \varepsilon, \quad (2.2)$$

dove:

$\rho_s$  [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ] indica la densità intrinseca del solido,

$\rho_a$  [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ] indica la densità dell'aria e

$\varepsilon$  è la porosità del letto.

Essendo la densità dell'aria trascurabile rispetto a quella del solido granulare, la densità del letto  $\rho_b$  si riduce alla seguente espressione:

$$\rho_b = \rho_s(1 - \varepsilon). \quad (2.3)$$

La densità apparente può essere a sua volta classificata in *densità versata* e *densità battuta*, le cui relative determinazioni seguono standard differenti.

#### 2.2.2.1 Densità versata

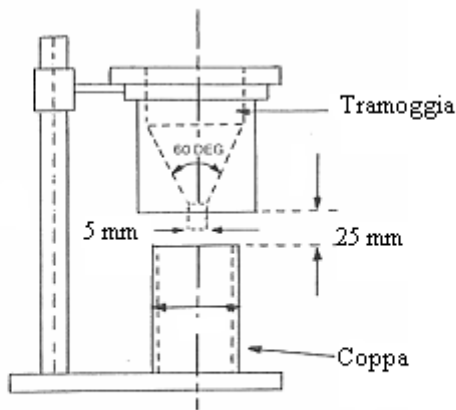
La densità versata la si determina facendo cadere la polvere all'interno di un contenitore ed è, probabilmente, la misura più frequentemente adottata.

Una polvere coesiva, caratterizzata da una buona forza strutturale garantita dalle forze adesive che agiscono fra le particelle di cui è composta, resisterà al collasso ed avrà quindi un basso valore di densità; per contro, una polvere scorrevole è caratterizzata da un'elevata densità.

Per la determinazione di questo valore citiamo il metodo ISO 3923/1 pensato inizialmente per polveri metalliche ma tutt'ora valido per altri materiali.

**ISO 3923/1** Si è utilizzata la stessa tramoggia conica impiegata nella misura dell'angolo di riposo. La tramoggia versa la polvere da un'altezza prestabilita di 2.5 cm in una coppa di diametro di 30 mm, volume pari a 25 cm<sup>3</sup> e peso di 145 grammi. Sia la tramoggia che il contenitore impiegati sono in polivinilcloruro (PVC).

La procedura prevede di versare la polvere nella tramoggia mantenendo l'orifizio chiuso e successivamente far fluire la polvere in modo da riempire completamente la coppa posta sotto la tramoggia. Per le polveri poco scorrevoli, lo standard prevede l'utilizzo di un filo metallico di diametro pari a 1 mm per facilitare il fluire della polvere. Dopo aver eliminato l'eccesso di polvere dal contenitore cilindrico con un righello, si determina la massa della polvere e quindi la densità versata, noti il volume ed il peso del contenitore. In Figura 2.2 è descritta l'apparecchiatura impiegata nella misura della densità versata.

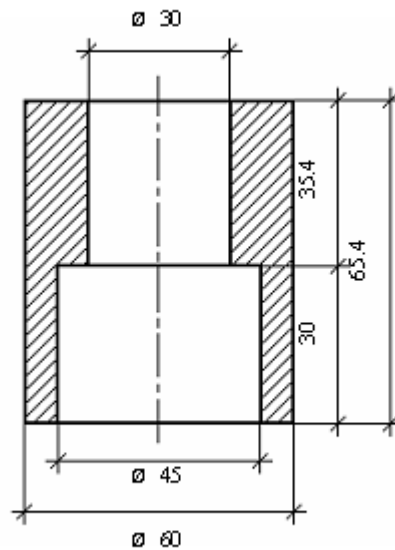


**Figura 2.2** Attrezzatura utilizzata per la misura della densità versata secondo il metodo ISO 3923/1. Fonte: Svarovsky, 1987.

### 2.2.2.2 Densità battuta

Secondo le norme ASTM, la densità battuta è quella ottenuta impaccando la polvere facendo vibrare il contenitore nel quale la polvere stessa viene versata. Tra tutte le procedure riportate in letteratura va menzionata quella suggerita da Kostelnik e Beddow che prevede l'impiego di una estensione mobile di 25 cm<sup>3</sup>. Tale estensione viene utilizzata per aumentare l'altezza della cavità del contenitore cilindrico usato nelle misure di densità versata. La coppa è fabbricata in PVC e ha una massa di 98 g. Dopo aver riempito la cavità del cilindro con l'estensione mediante la stessa procedura impiegata nella misurazione della densità versata, la polvere viene impaccata in seguito a vibrazioni impartite con uno strumento a manovella. Questo dispositivo è capace di imprimere due colpi ogni giro e la prova viene condotta in modo che il campione subisse 300 colpi.

In Figura 2.3, è schematizzata l'estensione per la coppa utilizzata nelle prove di caratterizzazione delle polveri.



**Figura 2.3** Disegno schematico dell'estensione per la coppa utilizzata nella misura della densità battuta. Fonte: Svarovsky, 1987.

Da esperienze sperimentali effettuate in precedenti elaborazioni, si può osservare che i valori di densità battuta risultano superiori ai valori di densità versata: il grado di impaccamento che contraddistingue la polvere nel primo caso è infatti maggiore e ne consegue una diminuzione della porosità del letto di polvere.

### 2.2.3 Rapporto di Hausner

Le misure della densità versata e battuta sono molto semplici ed economiche da effettuare e forniscono un'indicazione qualitativa della coesività della polvere. Invece, per definire un indice che quantifichi la scorrevolezza della polvere, bisogna introdurre il rapporto di Hausner HR (Abdullah e Geldart 1999) che è definito come

$$HR = \frac{\rho_{battuta}}{\rho_{versata}} \quad (2.4)$$

tale parametro quindi, misura la tendenza allo scorrimento di un materiale granulare ed è tanto più elevato quanto è più alta la coesività delle particelle; aumenta inoltre al diminuire di queste ed al discostarsi della loro forma rispetto a quella sferica.

I valori del rapporto di Hausner, associati a quelli dell'angolo di riposo, permettono di classificare le polveri secondo i criteri illustrati nella Tabella 2.1.

**Tabella 2.1.** *Classificazione delle polveri in funzione del rapporto di Hausner e dell'angolo di riposo*

<b>Tipo di materiale</b>	<b>HR</b>	<b><math>\alpha</math> [°]</b>
<i>No Flowing</i>	> 1.4	> 60
<i>Cohesive</i>	> 1.4	> 60
<i>Fairly free-flowin</i>	1.25 – 1.40	45 – 60
<i>Free-flowing</i>	1.00 – 1.25	30 - 45
<i>Excellent flowing</i>	1.00 – 1.25	10 - 30
<i>Aerated</i>	1.00 – 1.25	< 10

I valori dei parametri appena descritti relativi al lattosio monoidrato, sono riportati nella Tabella 2.2.

**Tabella 2.2.** *Valori relativi al lattosio monoidrato*

<b><math>\alpha</math></b>	44.7°
<b>Densità versata</b>	0.43 g/cm <sup>3</sup>
<b>Densità battuta</b>	0.61 g/cm <sup>3</sup>
<b>HR</b>	1.43

Confrontando i valori riscontrati in letteratura con quelli riportati in Tabella 2.1, si osserva che il lattosio mostra un comportamento intermedio fra una polvere coesiva ed una polvere “*fairly free – flowin*” (scarsamente scorrevole).

## 2.3 Strumentazione

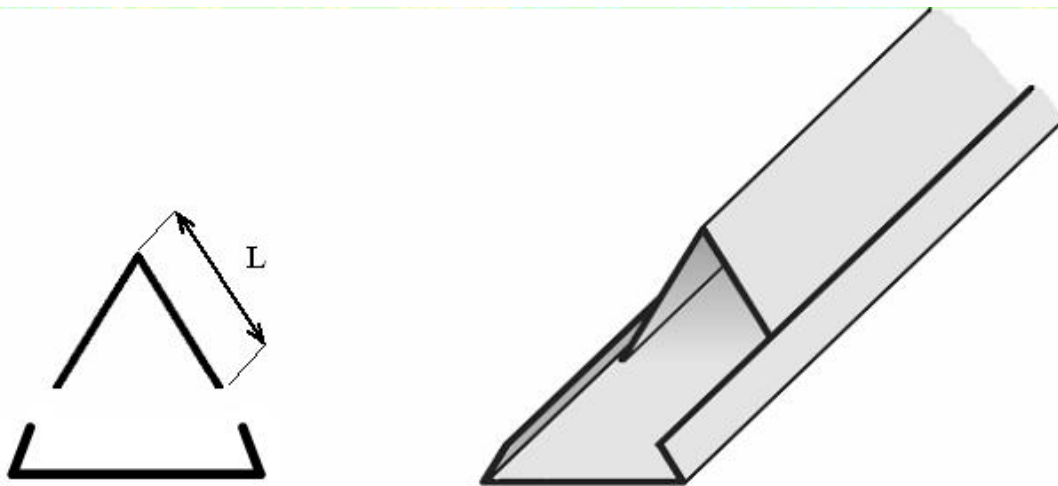
In questo elaborato sono state messe a confronto due diverse geometrie per il campionamento delle polveri coesive. Esse sono:

- le sonde triangolari
- le sonde semicilindriche

Entrambe, oltre ad essere sonde innovative, sono state sperimentate e sviluppate presso il Laboratorio in cui è stato condotto questo lavoro di Tesi (DIPIC).

### 2.3.1 La sonda triangolare

Questa sonda, che funziona per polveri coesive, è costituita da due profilati metallici aventi sezioni trasversali aperte di forma opportuna: nel nostro caso saranno rispettivamente a forma triangolare (triangolo rettangolo isoscele) e trapezoidale. I due profilati si devono poter unire saldamente in modo da scorrere uno rispetto all'altro ed, una volta uniti, dovranno costituire un prisma cavo con sezione trasversale chiusa.

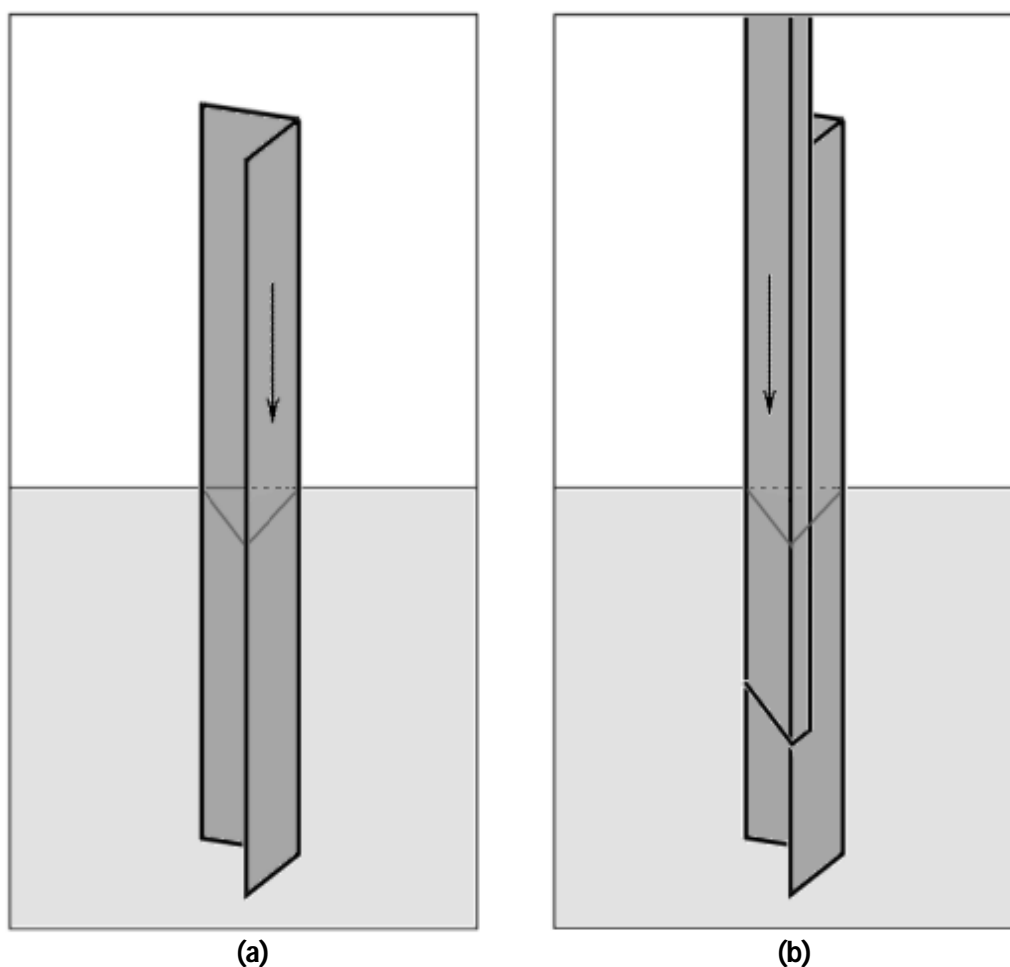


*Figura 2.4 Geometria della sonda triangolare impiegata durante la sperimentazione.*

L'utilizzo della sonda è molto semplice ed è illustrato nella Figura 2.4:

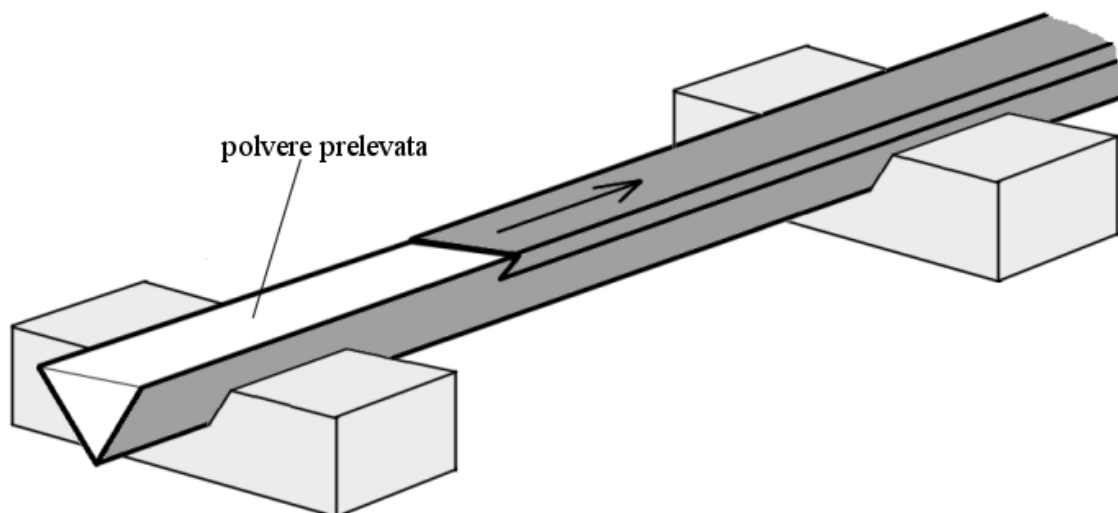
- 1) il profilato trapezoidale viene inserito nel letto di polvere; il tutto fino a raggiungere la profondità di campionamento desiderato (figura 2.5a),
- 2) si inserisce anche il secondo profilato, quello triangolare, accoppiandolo con il primo (figura 2.5b),
- 3) si estrae la sonda con il campione racchiuso al suo interno.





**Figura 2.5** Metodo di utilizzo della sonda triangolare

Dopo averla estratta, la sonda deve essere posta su un piano d'appoggio con la "base" del triangolo rivolta verso l'alto; a tale scopo, conviene utilizzare degli opportuni sostegni che permettano di posizionare la sonda nel modo rappresentato in figura 5.3; in seguito, come si può notare sempre in figura 5.3, facendo scorrere la parte superiore della sonda, è possibile accedere agevolmente al campione di polvere, il quale rimarrà contenuto nel profilato triangolare; si possono così prelevare dei sottocampioni delle dimensioni opportune che verranno, in seguito, analizzati separatamente; con i risultati di tali analisi è possibile costruire il profilo della composizione della polvere lungo tutta la sezione di letto sondato.



**Figura 2.6** Modalità di apertura della sonda triangolare.

A tal scopo si sono quindi realizzate tre sonde triangolari di lato rispettivamente:

- $l_1 = 2 \text{ cm}$  avente un'area equivalente  $A_1 = 1.750 \text{ cm}^2$ ,
- $l_2 = 1.5 \text{ cm}$  avente un'area equivalente  $A_2 = 0.850 \text{ cm}^2$ ,
- $l_3 = 1 \text{ cm}$  avente un'area equivalente  $A_3 = 0.330 \text{ cm}^2$ .

La scelta di questa particolare geometria è stata dettata principalmente dalla sua maggiore semplicità realizzativa: disponendo di due strisce di lamierino delle dimensioni opportune è sufficiente eseguire tre operazioni di piegatura per realizzare la sonda desiderata. I profilati triangolari sono stati reperiti direttamente sul mercato e sono in alluminio; il profilato a sezione trapezoidale è stato ottenuto attraverso due operazioni di piegatura di un lamierino di alluminio dello spessore di 0.8 mm. Le dimensioni della sonda sono state scelte tenendo presente l'esigenza di prelevare una quantità di polvere sufficiente da sottoporre alle successive analisi e la necessità di non sprecare materiale. In ambito industriale, le sonde utilizzate per il campionamento di polveri coesive presentano capacità che variano da 5 ml a 100 ml a seconda delle esigenze ([www.internationalpbi.it](http://www.internationalpbi.it)). Nella sperimentazione si sono impiegate sonde con capacità di  $V_1 = 44 \text{ ml}$ ,  $V_2 = 24.75 \text{ ml}$  e  $V_3 = 11 \text{ ml}$ .

### 2.3.2 La sonda semicilindrica

Tale sonda, a differenza della precedente, presenta solo due angoli retti. Il meccanismo d'impiego della sonda è lo stesso di quella triangolare: si inserisce il profilato a sezione rettangolare nel letto di polvere e poi si introduce il secondo profilato a sezione semicircolare accoppiandolo per scorrimento con il primo.



**Figura 2.7** Geometria della sonda semicilindrica alternativa alla sonda triangolare.

La geometria che contraddistingue questa sonda è più complicata da realizzare perché non sono disponibili, sul mercato, profilati a sezione semicircolare; è stato quindi necessario acquistare profilati a sezione circolare in alluminio e, per ottenere la forma desiderata, si è ricorsi ad operazioni di fresatura e limatura. Il profilato ottenuto è stato poi chiuso utilizzando un lamierino di alluminio dello spessore di 0.5 mm che è stato piegato su due lati a 90°.

Si sono costruite due sonde di diametro interno  $d_i$  rispettivamente di:

- $d_{i,4} = 1$  cm avente un'area  $A_4 = 0.393$  cm<sup>2</sup>,
- $d_{i,5} = 0.8$  cm avente un'area  $A_5 = 0.251$  cm<sup>2</sup>.

Infine le capacità di queste due sonde sono rispettivamente di 4.52 ml e 7.1 ml.



# Capitolo 3

## La sperimentazione

In questo capitolo si vogliono caratterizzare e confrontare le caratteristiche delle diverse geometrie di sonde utilizzate. Il tutto viene fatto prendendo in considerazione:

- il *rendimento di carotaggio*, ovvero l'indice del grado di compattazione della polvere prelevata e
- il *grado di compattazione* introdotto durante il campionamento del letto, ovvero la variazione della densità del letto in funzione dell'altezza del letto campionato.

### 3.1 Meccanismo di trasmissione degli sforzi all'interno della sonda

Quando si introduce la sonda tubolare all'interno del sistema granulare, le forze che interessano lo scorrimento della carota all'interno del tubo sono:

- la forza di attrito  $F_A$  che si genera sulla superficie interna della sonda,
- la forza peso  $F_P$  del materiale campionato e
- la resistenza  $F_T$  esercitata dal letto ad una determinata profondità.

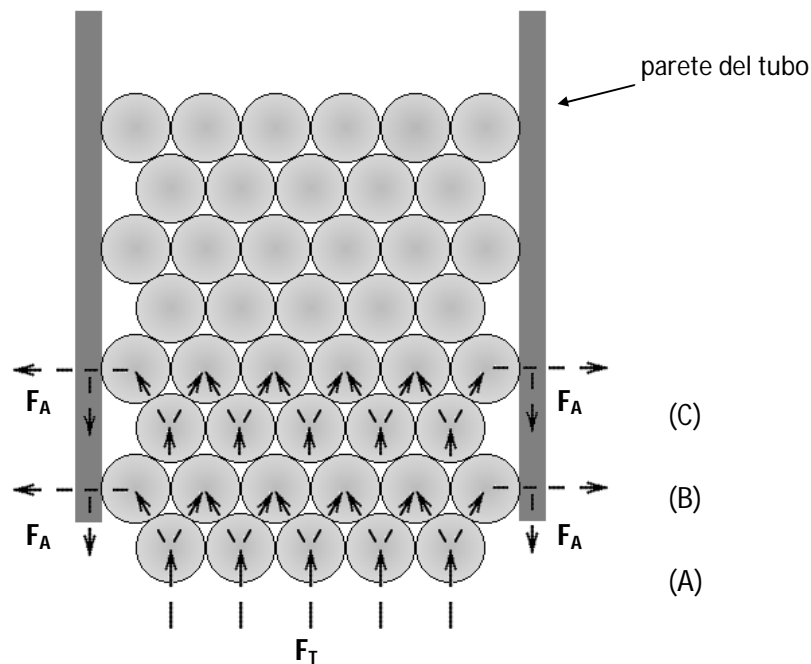
La forza d'attrito e la forza peso ostacolano il campionamento della polvere perché si oppongono alla forza  $F_T$  che tende a far risalire la carota verso l'alto.

Sperimentalmente si osserva che i materiali coesivi sono difficilmente sondabili a causa della formazione di un tappo di polvere che compromette l'esito finale del campionamento.

Per cercare di spiegare le ragioni che portano alla formazione del tappo si considera il meccanismo di trasmissione degli sforzi proposto in Figura 3.1.

Le particelle di polvere esterne ed in testa al tubo (strato A) sono spinte verso l'alto dalla forza  $F_T$  e ciascuna particella si interpone tra due particelle dello strato B. Quest'ultime tendono quindi a distanziarsi tra loro esercitando una forza perpendicolare

alla parete del tubo; il fenomeno appena descritto si propaga anche agli strati soprastanti, perché le particelle dello strato B esercitano una forza sulle particelle dello strato C che a loro volta generano una pressione contro la parete. Tale meccanismo di trasmissione delle forze determina l'insorgere della forza di attrito  $F_A$  tra le particelle di polvere e la parete interna della sonda. Tale forza impedisce l'ulteriore scorrimento della polvere verso l'alto al punto di arrivare a comprimere la polvere sottostante anziché prelevarla ed è responsabile del fenomeno di trascinamento della polvere verso il basso.



**Figura 3.1.** Meccanismo di trasmissione degli sforzi all'interno della sonda nella fase di inserimento nel letto di polvere. Fonte: Barbiero N., 2000.

Se si ipotizza di suddividere la carota in sezioni trasversali, si nota che la sezione più compressa risulta essere quella inferiore, perché la forza che tende a spingerla verso l'alto deve vincere l'attrito esercitato dalla parete sulla sezione stessa e l'attrito relativo a tutte le sezioni di carota soprastanti.

La forza d'attrito complessiva tra la carota e la parete interna cresce all'aumentare della quantità di polvere che fluisce all'interno del tubo poiché aumenta la superficie di contatto; la carota scorrerà all'interno della sonda finché la forza d'attrito  $F_A$  non è superiore alla resistenza  $F_T$ .

Da studi relativi a Tesi precedenti (Barbiero 2000), per ridurre la formazione del tappo che impedisce alla polvere di scorrere all'interno di un tubo inserito verticalmente nel letto, sono state utilizzate delle sonde costituite da due profilati accoppiati tra loro, ovvero le sonde triangolari e quelle semicilindriche precedentemente descritte. Infatti, se si inserisce all'interno del letto di polvere un profilato avente una sezione aperta, la polvere, non essendo confinata all'interno di un volume chiuso, non può esercitare una pressione contro la parete che determina l'insorgere della forza d'attrito  $F_A$ .

### **3.2 Efficienza di campionamento delle sonde sperimentali**

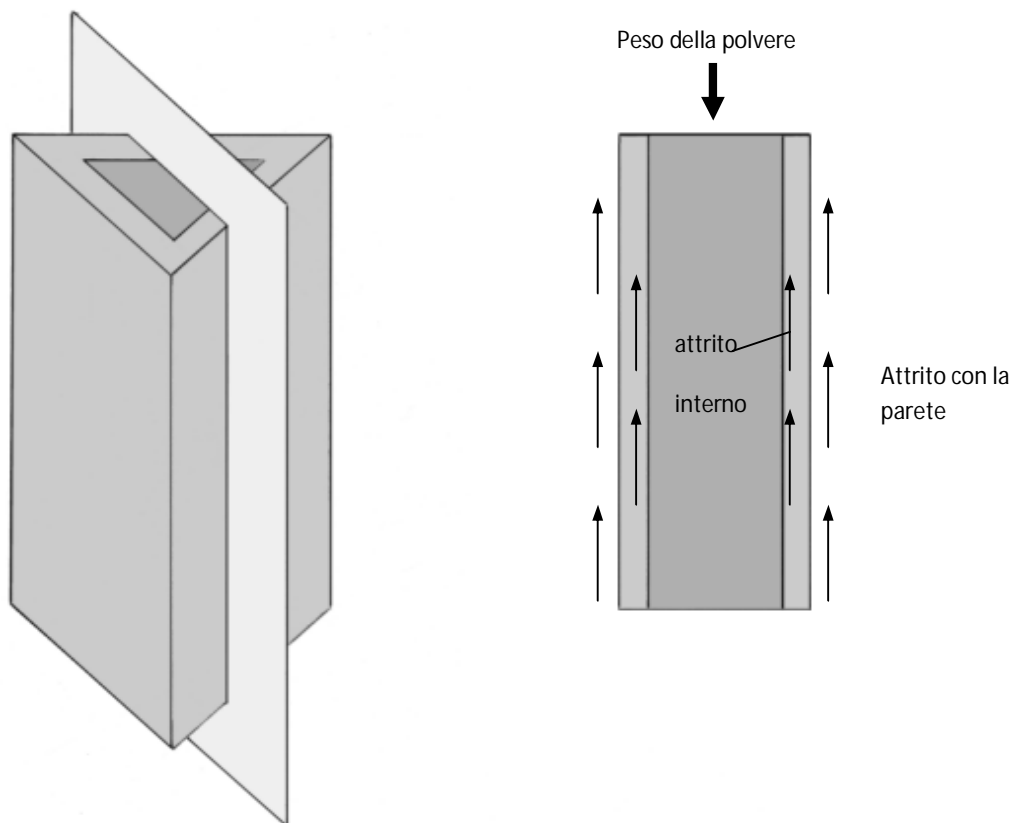
Per caratterizzare e confrontare le prestazioni delle diverse sonde, si propone una misura dell'efficienza  $\eta$  del campionamento, ovvero si quantifica la compattazione risultante dall'inserimento della sonda nel letto di lattosio monoidrato. L'efficienza è data semplicemente dal rapporto tra il volume di polvere prelevato dalla sonda ed il volume che, teoricamente, la sonda stessa potrebbe ritirare in assenza di attrito e compattazione. Però, a causa della sezione costante delle sonde, l'efficienza può essere espressa come riportato nella (1.3).

Il letto su cui avviene il campionamento viene preparato facendo passare il lattosio attraverso un setaccio, in modo tale da minimizzare il livello di compattazione della polvere. Il rendimento è stato valutato per entrambe le sonde presentate e per ogni dimensione di esse.

Nelle tabelle seguenti, si riportano i rendimenti volumetrici relativi alle prove di campionamento effettuate con le sonde realizzate in laboratorio su un letto di lattosio di 15 cm ( $H_t$ ); tale altezza è sufficiente per evidenziare le differenze di performances fra le varie sonde.

### 3.2.1 La sonda triangolare

La sonda triangolare, pur non presentando un sistema di chiusura in corrispondenza dell'estremità inferiore, è in grado di sostenere il materiale nella fase di estrazione, nonostante la forza di gravità che tende a favorirne la fuoriuscita. Infatti, se si considera il bilancio di forze di un generico volume di polvere, si può osservare che l'intero volume è sostenuto dalla forza di attrito che si genera sulla parete interna della sonda, mentre la polvere che non è direttamente a contatto con la parete è sostenuta dalle forze di attrito interno che si oppongono allo scorrimento reciproco degli strati del materiale. Il tutto è osservabile dalla Figura 3.1, dove è rappresentata una sezione ideale del volume di polvere all'interno della sonda.



**Figura 3.2.** Forze che sostengono la polvere all'interno della sonda triangolare

Da alcune osservazioni sperimentali si è concluso che, delle due forze d'attrito quella che condiziona il buon esito del prelievo è, solitamente, quella che si instaura con la parete della sonda.

Verranno di seguito elencati i dati raccolti durante le prove sperimentali effettuate in laboratorio.



**Tabella 3.3.** *Efficienza di campionamento che caratterizza la sonda triangolare di lato  $l_1 = 2 \text{ cm}$*

n° carota	$h_e$ [cm]	$\eta_{\text{carotaggio}}$ [%]
1	12.8	85
2	12.5	83
3	12.8	85

**Tabella 3.2.** *Efficienza di campionamento che caratterizza la sonda triangolare di lato  $l_2 = 1.5 \text{ cm}$*

n° carota	$h_e$ [cm]	$\eta_{\text{carotaggio}}$ [%]
1	13.2	88
2	12.8	85
3	12.8	85

**Tabella 3.3.** *Efficienza di campionamento che caratterizza la sonda triangolare di lato  $l_3 = 1 \text{ cm}$*

n° carota	$h_e$ [cm]	$\eta_{\text{carotaggio}}$ [%]
1	13.3	89
2	13.5	90
3	13.2	88

La sonda triangolare ha il vantaggio di non presentare delle micro cavità sulla superficie esterna; queste infatti, potrebbero causare segregazione, con l'accumulo di polveri fini e con il conseguente inquinamento del campione prelevato. Inoltre, come evidenziato nel § 3.1, tale sonda limita la formazione del tappo di polvere, il quale è responsabile dell'abbassamento dell'efficienza di campionamento.

Il vero problema di queste sonde è legato a fenomeni di trascinamento che si verificano nella zona di contatto fra polvere e parete interna del profilato: qui infatti, nella fase di inserimento della sonda, il materiale campionato tende ad essere trascinato verso il basso e quindi, a mescolarsi con gli strati di letto sottostanti contaminandoli. Il tutto comporta una variazione della disposizione delle particelle nel campione prelevato rispetto al momento dell'inserimento della sonda.

### 3.2.2 Sonda semicilindrica

Per eliminare il trascinarsi provocato dalla sonda triangolare in corrispondenza degli spigoli, problematica emersa nel §3.2.1, si è costruita la sonda a geometria semicilindrica caratterizzata da due soli spigoli ad angolo retto. Qui di seguito sono riportati i valori di efficienze per le due diverse misure di sonde proposte.

**Tabella 3.4.** *Efficienza di campionamento che caratterizza la sonda semicilindrica di diametro  $d_{i,4} = 1 \text{ cm}$*

n° carota	$h_e$ [cm]	$\eta_{\text{carotaggio}}$ [%]
1	14	93
2	14	93
3	13.8	92

**Tabella 3.5.** *Efficienza di campionamento che caratterizza la sonda semicilindrica di diametro  $d_{i,5} = 0.8 \text{ cm}$*

n° carota	$h_e$ [cm]	$\eta_{\text{carotaggio}}$ [%]
1	14.3	95
2	14.5	97
3	14.4	96

Eliminando quindi l'angolo retto, quello che caratterizza la sonda triangolare, si minimizza il trascinarsi delle polveri ottenendo quindi un'efficienza di campionamento decisamente maggiore rispetto al caso precedente.

### 3.2.3 Confronto fra le due tipologie di sonde

Per riassumere le prestazioni delle tre tipologie di sonde analizzate in questo lavoro di Tesi, si propongono in Tabella. 3.6, le efficienze medie di campionamento.

**Tabella 3.6.** *Confronto dei rendimenti relativi alle tre diverse tipologie di sonde analizzate in laboratorio*

<b>TIPOLOGIA DI SONDA</b>	<b><math>\eta_{\text{carotaggio}}</math> [%]</b>
<b>triangolare di lato <math>l_1</math></b>	84
<b>triangolare di lato <math>l_2</math></b>	86
<b>triangolare di lato <math>l_3</math></b>	89
<b>semicilindrica di diametro <math>d_{i,4}</math></b>	93
<b>semicilindrica di diametro <math>d_{i,5}</math></b>	96

Dai dati raccolti si può concludere dicendo che:

- 1) la tipologia di sonda che garantisce le migliori prestazioni, è quella semicilindrica: essa, quando è introdotta nel sistema granulare, provoca un minor grado di consolidamento della polvere riducendo quindi, la formazione del tappo
- 2) la riduzione dell'area della sezione trasversale della sonda tende a favorire il sostenimento della polvere. Riducendo il lato  $l$  o il diametro interno  $d_i$ , a seconda della tipologia di strumento utilizzato, si riduce anche il rapporto fra il volume complessivo della polvere e la superficie interna della sonda stessa; quindi, visto che il peso della polvere è proporzionale al volume e l'attrito con la parete è proporzionale alla superficie, una riduzione della dimensione favorirà il sostenimento del campione.

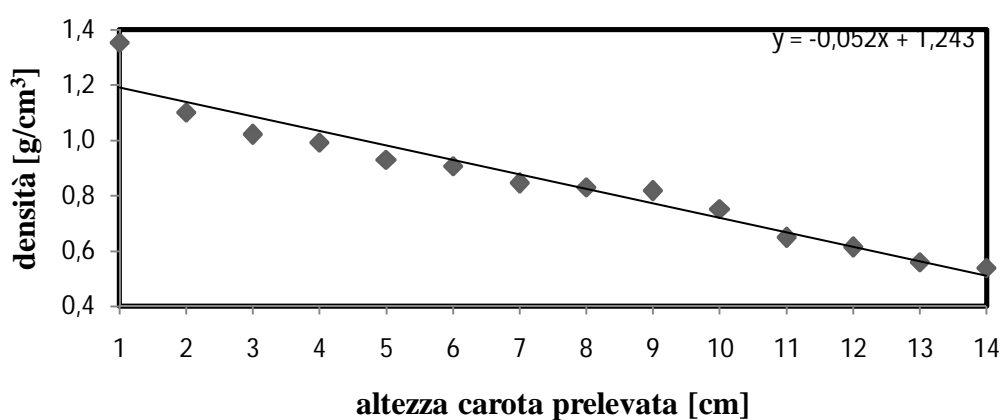
Si può inoltre osservare che, le sonde aventi il rendimento più elevato sono quelle che provocano un trascinarsi inferiore nel momento in cui vengono introdotte nel letto di polvere. Questo aspetto conferma che il meccanismo ipotizzato alla base del campionamento è corretto.

### 3.3 Variazione della densità della polvere in funzione dell'altezza del letto campionato

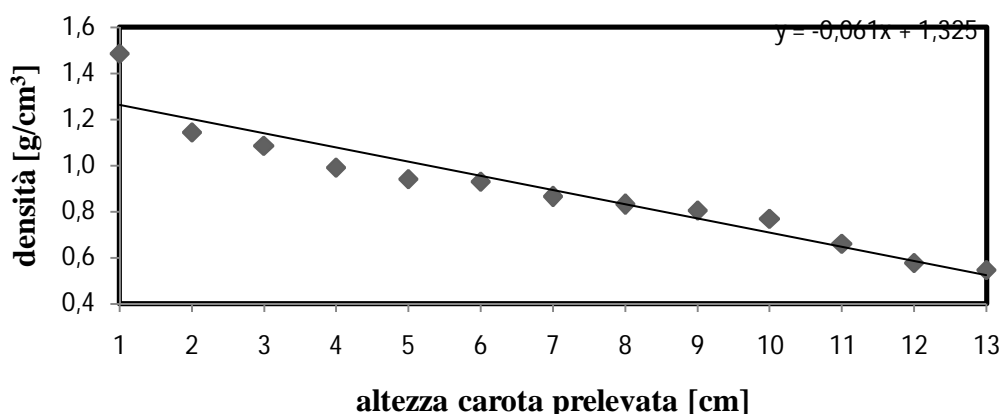
Per la determinazione di questo aspetto si procede nella seguente maniera:

- 1) suddivisione dell'altezza della carota prelevata con passo di 1 cm,
- 2) peso del quantitativo di polvere suddivisa che corrisponde ad un volume noto,
- 3) valutazione della variazione di densità in funzione del letto campionato.

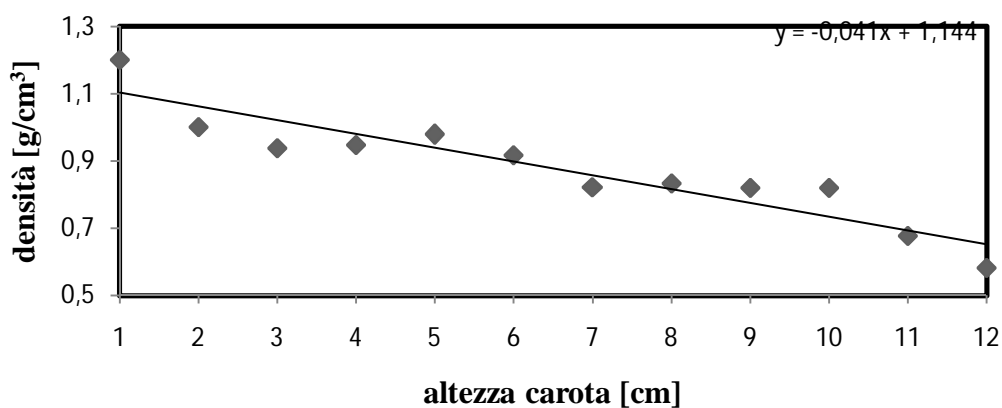
Si procede quindi con l'analisi dei dati ottenuti durante le prove sperimentali:



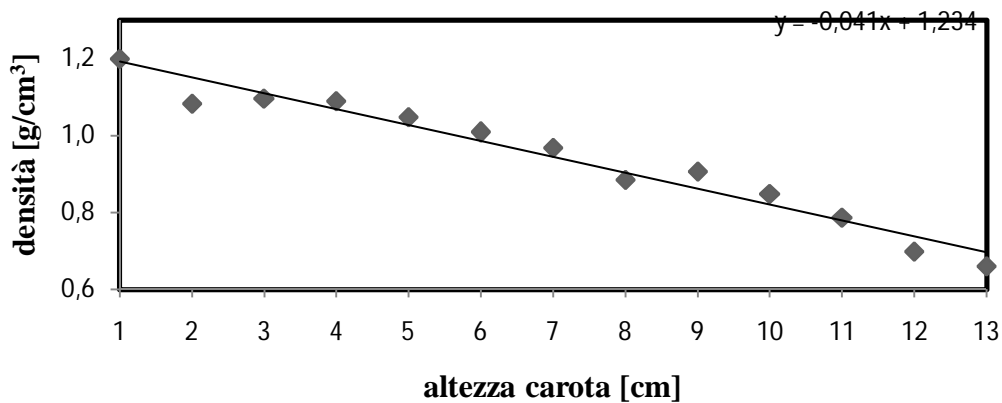
**Figura 3.2** Andamento della densità della polvere di lattosio in funzione dell'altezza della carota prelevata con la sonda semicilindrica di diametro  $d_{i,4} = 1$  cm.



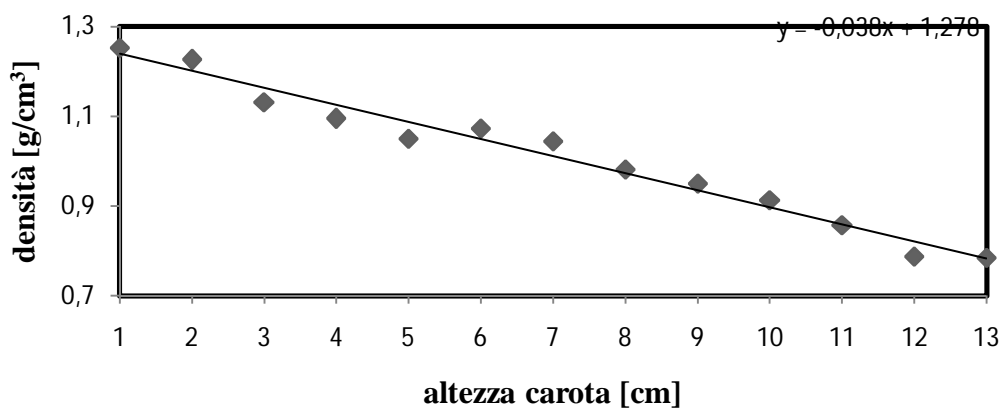
**Figura 3.3** Andamento della densità della polvere di lattosio in funzione dell'altezza della carota prelevata con la sonda semicilindrica di diametro  $d_{i,5} = 0.8$  cm.



**Figura 3.5** Andamento della densità della polvere di lattosio in funzione dell'altezza della carota prelevata, con la sonda triangolare di lato  $l_1 = 2$  cm



**Figura 3.6** Andamento della densità della polvere di lattosio in funzione dell'altezza della carota prelevata con la sonda triangolare di lato  $l_2 = 1.5$  cm.

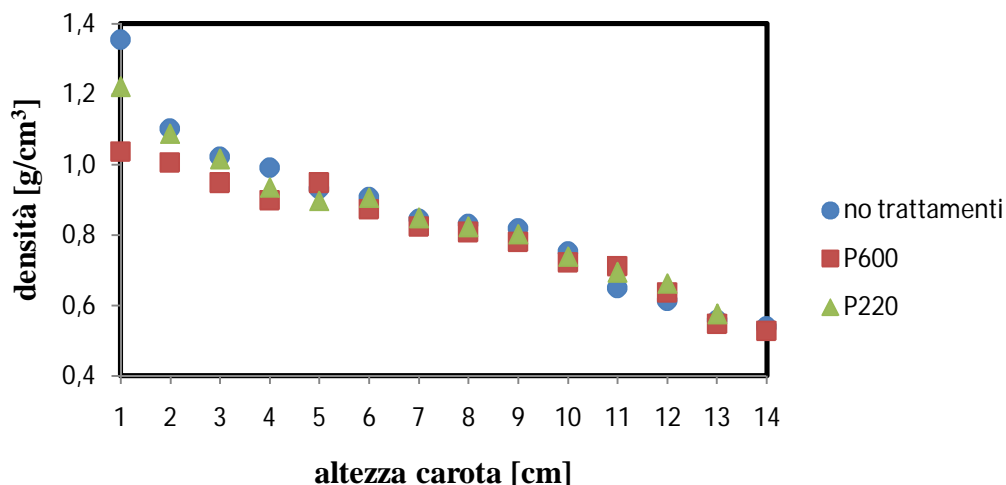


**Figura 3.7** Andamento della densità della polvere di lattosio in funzione dell'altezza della carota prelevata con la sonda triangolare di lato  $l_3 = 1$  cm.

Dall'analisi dei dati sperimentali si conclude quindi che, l'andamento della densità per tutte le tipologie di sonde analizzate, varia linearmente con la profondità della carota prelevata; questo significa che, durante le applicazioni delle *particle technology* non è propriamente corretto considerare costante la densità del materiale estratto lungo tutto lo strumento utilizzato per campionare un determinato sistema, costituito da polveri coesive. Tale variazione di densità, sempre secondo le prove sperimentali, è meno accentuata, anche se di poco, nel caso delle sonde triangolari: questo lo si nota dal coefficiente angolare della retta che interpola i dati raccolti durante lo studio in laboratorio.

Un particolare molto interessante riguarda le sonde semicilindriche: la densità del materiale corrispondente alla parte più profonda della carota estratta, è decisamente più elevata rispetto agli altri valori misurati.

Questo fenomeno, come si può notare dalla Figura 3.8, può essere “smorzato” per la sonda avente il diametro interno  $d_i = 1$  cm: il tutto trattando la superficie interna del trafilato con opportune carte abrasive, le P220 e le P600. Da ricordare che P è il parametro che caratterizza queste particolari carte ed è inversamente proporzionale alla grossezza della grana quindi, minore sarà questo valore, più ruvida risulterà la superficie trattata.



**Figura 3.8** Confronto fra i vari andamenti del grado di compattazione di una sonda semicilindrica di diametro  $d_i = 1$  cm, in funzione del trattamento subito dalla superficie del trafilato

# Conclusioni

In molteplici operazioni industriali è importante stabilire l'omogeneità spaziale di miscele granulari. La caratterizzazione delle miscele, in particolare nell'industria farmaceutica, è un aspetto diventato di fondamentale importanza in seguito alla sentenza Barr (1993) che prescrive alle compagnie farmaceutiche di dimostrare il grado di omogeneità spaziale delle miscele di polveri impiegate nella produzione dei medicinali.

In ambito industriale le tecniche consolidate consistono in 'carotaggi' con sonde che in molti casi risultano eccessivamente intrusive, con il rischio di ottenere misure non rappresentative.

Una possibile alternativa alle attuali tecniche di campionamento è rappresentata dalle sonde triangolari e semicilindriche che sono state ampiamente trattate in questo lavoro di Tesi: esse infatti, sono state caratterizzate, sia mediante l'analisi dei rendimenti di carotaggio, sia mediante lo studio del grado di compattazione della polvere nella sonda stessa.

In termini di rendimento di carotaggio, i risultati migliori si sono ottenuti con la sonda semicilindrica: tali prestazioni inoltre, crescono al diminuire della dimensione dello strumento.

Per quanto concerne il grado di compattazione nella sonda della polvere prelevata, dai dati sperimentali, esso non risulta costante al variare dell'altezza della carota come spesso si assume nelle applicazioni della *particletechnology*, ovvero quella parte dell'ingegneria che si occupa della produzione e del trattamento delle polveri.

Quest'ultima prova inoltre, è stata condotta trattando la superficie delle sonde con due diverse tipologie di carte abrasive: la P220 e la P600. I risultati ottenuti però non sono stati rilevanti poiché la compattazione diminuisce sensibilmente.





# Riferimenti bibliografici

- Allen T. (1990). *ParticleSizeMeasurement*. Chapman and Hall, London, New York (U.S.A), p.250.
- Barbiero, N. (2000). Tecniche di campionamento finalizzate a misure di composizione in miscele di polveri. *Tesi di Laurea in Ingegneria Chimica*, DIPIC, Università di Padova.
- Muzzio, F. J., P. Robinson, C. Whigtman e D. Brone (1997). Sampling practices in powder blending. *International Journal of Pharmaceutics*, **155**, 153-178.
- Muzzio, F. J., C.L. Goodridge, A. Alexander, P. Arratia, H. Yang e O. Sudah (2003). Sampling and Characterization of pharmaceutical powders and granular blends. *International Journal of Pharmaceutics*, **250**, 51-64.
- Susana, L. (2008). Sviluppo e caratterizzazione di sonde per il campionamento di polveri coesive. *Tesi di Laurea in Ingegneria Chimica per lo Sviluppo Sostenibile*, DIPIC, Università di Padova.
- Susana, L., P. Canu e A.C. Santomaso (2011). Development and characterization of a new thief sampling device for cohesive powders. *International Journal of Pharmaceutics*, **416**, 260-267.
- Svarovsky, L.(1984). *Powder testing guide: methods of measuring the physical properties of bulk powders*. Elsevier Applied Science, London and New York (U.S.A.).
- Zampieri, S. (1999). Sviluppo di un miscelatore pilota per solidi granulari e sperimentazione preliminare. *Tesi di Laurea in Ingegneria Chimica*, DIPIC, Università di Padova.

## Siti web

<http://www.internationalpbi.it>