

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
ESCOLA DE ENGENHARIA DE SÃO CARLOS

LUÍS GUSTAVO CAMARGO MARTOS

Modelagem de empacotamento de partículas multifatorial utilizando redes neurais

SÃO CARLOS

2023

LUÍS GUSTAVO CAMARGO MARTOS

**Modelagem de empacotamento de partículas multifatorial utilizando
redes neurais**

Versão Corrigida

Dissertação apresentada ao programa de Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais da Universidade de São Paulo, para obtenção do título de Mestre em Ciências.

Área de concentração:
Desenvolvimento, Caracterização e aplicação de Materiais

Orientador: Prof. Dr. Eduardo Bellini
Ferreira

SÃO CARLOS

2023

AUTORIZO A REPRODUÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTE TRABALHO,
POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO, PARA FINS
DE ESTUDO E PESQUISA, DESDE QUE CITADA A FONTE.

Ficha catalográfica elaborada pela Biblioteca Prof. Dr. Sérgio Rodrigues Fontes da
EESC/USP com os dados inseridos pelo(a) autor(a).

CM387m Camargo Martos, Luis Gustavo
Modelagem de empacotamento de partículas
multifatorial utilizando redes neurais / Luis Gustavo
Camargo Martos; orientador Eduardo Bellini Ferreira.
São Carlos, 2023.

Dissertação (Mestrado) - Programa de
Pós-Graduação em Ciência e Engenharia de Materiais e
Área de Concentração em Desenvolvimento, Caracterização
e Aplicação de Materiais -- Escola de Engenharia de São
Carlos da Universidade de São Paulo, 2023.

1. Empacotamento. 2. Partículas. 3. Vidros. 4.
Cerâmicas. 5. Redes neurais. 6. Aprendizado de máquina.
7. Granulometria. 8. Fator de forma. I. Título.

FOLHA DE JULGAMENTO

Candidato: Engenheiro **LUÍS GUSTAVO CAMARGO MARTOS**.

Título da dissertação: "Modelagem de empacotamento de partículas multifatorial utilizando redes neurais".

Data da defesa: 07/11/2023.

Comissão Julgadora

Resultado

Prof. Dr. **Eduardo Bellini Ferreira**
(Orientador)
(Escola de Engenharia de São Carlos – EESC/USP)

Aprovado

Prof. Dr. **Daniel Roberto Cassar**
(Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais - CNPEM)

Aprovado

Prof. Dr. **Bruno Luis Daminelli**
(Instituto de Arquitetura e Urbanismo – IAU/USP)

Aprovado

Coordenador do Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Materiais:

Prof. Associado **Rafael Salomão**

Presidente da Comissão de Pós-Graduação:

Prof. Titular **Carlos De Marqui Junior**

AGRADECIMENTOS

Gostaria de mencionar minha profunda gratidão ao meu orientador Prof. Dr. Eduardo Bellini Ferreira pelos conselhos acadêmicos e ensinamentos sobre a ciência dos materiais no trabalho apresentado, bem como o esforço para a viabilização da pesquisa e minha construção profissional.

Sou grato ao auxílio, à gestão do projeto e acompanhamento de experimentos pelo Dr. Paulo Giovany Quadros do Amaral, em que seu aconselhamento foi fundamental durante todo o trabalho.

Expresso profunda gratidão ao Departamento de Engenharia de Materiais pela oportunidade e o amparo à pesquisa, bem como à agência de fomento Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES) - Código de Financiamento 001- pela bolsa de mestrado, que viabilizou a realização deste trabalho acadêmico e minha capacitação profissional. Agradeço ao acesso aos equipamentos fornecidos pela Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP), fundamental para a concretização da pesquisa.

RESUMO

Martos, L. G. C. **Modelagem de empacotamento de partículas multifatorial utilizando redes neurais**. 83p. Dissertação (Mestrado) – Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2023.

O estudo do empacotamento encontra inúmeras aplicações e é influenciado por diversas variáveis. No caso de partículas, os modelos e as ferramentas atuais se baseiam na caracterização intensiva de variáveis relacionadas à morfologia das partículas e ao processo de empacotamento, através dos quais as correlações entre elas vêm sendo mais bem compreendidas. Mesmo assim, a ciência do empacotamento de partículas é pouco explorada na manufatura de alguns materiais cerâmicos, por exemplo, na fabricação de vitrocerâmicas ou compósitos cerâmicos por sinterização, embora seu controle seja essencial para o controle do processo e de suas propriedades finais. Além disso, os modelos de empacotamento mais aprimorados na literatura foram desenvolvidos para concretos, principalmente para construção civil, deixando lacunas para sua aplicação em outros sistemas cerâmicos. Neste trabalho, modelos de empacotamento baseados em métodos de aprendizado de máquina (*machine learning*) foram construídos com base em variáveis consolidadas na literatura, como fatores de forma, distribuição granulométrica, dimensão fractal e o efeito no empacotamento sob compressão & vibração uniaxial. O comportamento do empacotamento de partículas de vidro e areia, com diferentes granulometrias e morfologias, foi estudado experimentalmente e comparado com os resultados dos modelos. Foram utilizados pós de vidro soda-cal-sílica comercial temperado termicamente, obtidos por moagem e separação em diferentes faixas granulométricas, e areia de um quartzito ornamental. As matérias-primas foram separadas em 8 granulometrias diferentes, sendo duas de areia e seis de vidro. Fatores de forma das partículas foram determinados por análise de imagens de aproximadamente 1000 partículas obtidas por microscopia óptica. A granulometria das amostras foi determinada por difração à laser, replicada sete vezes. O fator de processo de empacotamento foi determinado em um sistema de compressão uniaxial com vibração durante 4 min, replicada 25 vezes. Os 41406 valores experimentais foram aplicados no treinamento de métodos de *machine learning*, a saber, *random forest*, redes neurais, e *support vector machine*. Os resultados mostraram grande precisão de previsão do empacotamento nos sistemas estudados, sendo o método das redes neurais o que mais acurado. O método *support vector machine* apresentou uma precisão maior devido ao seu caráter linear de modelamento.

Palavras-chave: Empacotamento, Partículas, Vidros, Cerâmicas, Redes neurais, Aprendizado de máquina, Granulometria, Fator de forma

ABSTRACT

Martos, L. G. C. **Multifactorial particle packing modeling using neural networks.** 83 p. Thesis (Master's degree) – School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, São Carlos, 2023.

The study of packing finds numerous applications and is influenced by several variables. In the case of particles, current models and tools are based on the intensive characterization of variables related to their morphology and the packing process, through which the correlations between them have been better understood. Even so, knowledge of particle packing has yet to be explored in manufacturing some ceramic materials, such as glass-ceramics or ceramic composites by sintering, although its control is essential. Furthermore, the most improved packing models in the literature were developed for concrete, mainly for civil construction, leaving gaps for their application in other ceramic systems. In this work, packing models based on machine learning methods were built based on variables consolidated in the literature, such as shape factors, particle size distribution, fractal dimension, and the effect on packing under uniaxial compression and vibration. The packing behavior of glass and sand particles, with different particle sizes and morphologies, was studied experimentally and compared with model results. Commercial thermally tempered soda-lime-silica glass powders, obtained by grinding and separation into different particle size ranges, and sand from an ornamental quartzite were used. The raw materials were separated into eight different particle sizes, two of which were sand and six were glass. Particle shape factors were determined by analyzing images of approximately 1000 particles obtained by optical microscopy. The particle size distributions were determined by laser diffraction and replicated seven times. The packing process factor was determined in a uniaxial compression system with vibration for 4 minutes and replicated 25 times. The 41406 experimental values were applied to the machine learning methods: random forest, neural networks, and support vector machines. The results showed great accuracy in predicting packaging in tested systems, with the neural network method being the most accurate. The support vector machine method also showed greater accuracy due to its linear modeling.

Keywords: Packing, Particles, Glass, Ceramics, Neural networks, Machine learning, Granulometry, Shape factor

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

CPFT – *cumulative percentage finer than* ou distribuição acumulada de partículas

MLP – *Multilayer Perceptron* ou perceptron multicamadas

RFT – *Random Forest Tree*

SVM – *Support Vector Machine*

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1 – COMPACTOS OBTIDOS A PARTIR DE MATÉRIAS-PRIMAS COM DIFERENTES RAZÕES DE PROGRESSÃO GEOMÉTRICA q , ONDE OS VALORES DE $q = 1/2$ E $1/3$ RESULTARAM EM MENORES POROSIDADES.	19
FIGURA 2 – POROSIDADE EM FUNÇÃO DO COEFICIENTE DE PROGRESSÃO GEOMÉTRICA, q , DE DIFERENTES MISTURAS DE AREIA E VIDRO MOÍDO, COM VALOR MÍNIMO ENTRE $[1/2, 1/3]$	19
FIGURA 3 - COMPARAÇÃO ENTRE AS CURVAS ACUMULADAS ÓTIMAS DE DIFERENTES MODELOS DE EMPACOTAMENTO DE PARTÍCULAS, SENDO O DIÂMETRO EM ESCALA LOGARÍTMICA.	23
FIGURA 4 - EFEITO DE AFASTAMENTO (A) E PAREDE (B), ONDE PARTE DAS PARTÍCULAS SE AFASTAM DEVIDO A INSERÇÃO DE UMA PARTÍCULA MAIS FINA NO ESPAÇAMENTO FORMADO PELO SEU EMPACOTAMENTO, E PARTE DO VOLUME DA PARTÍCULA É RETIRADO DO MEIO CONTÍNUO NA INTERFACE COM A INTRODUÇÃO DE UMA PARTÍCULA MAIS GROSSA (CUJA SUPERFÍCIE É REPRESENTADA NA FIGURA PELA LINHA VERTICAL).	25
FIGURA 5 - FLUXOGRAMA PARA O TREINAMENTO DA REDE NEURAL E VALIDAÇÃO DOS DADOS.....	43
FIGURA 6 - CURVAS UTILIZADAS PARA A CALIBRAÇÃO DA MENSURAÇÃO FRACTAL, DA ESQUEDA PRA DIREITA: SIERPINSKI, CARPETE DE SIERPINSKI E A CURVA DE KOCH.....	48
FIGURA 7 - TRATAMENTO DE IMAGEM, NA SEGUINTE ORDEM: (A) CARREGAMENTO DA IMAGEM ORIGINAL, (B) TRANSFORMAÇÃO EM IMAGEM BINÁRIA, (C) INVERSÃO DE IMAGEM, PREENCHIMENTO DOS VAZIOS, RETIRADA DE RUÍDO (OUTLIERS) E (D) DETERMINAÇÃO DO CONTOURNO DA PARTÍCULA.	49
FIGURA 8 - VETORES DE ESFORÇOS DURANTE OS ESFORÇOS DE COMPRESSÃO E VIBRAÇÃO.	51
FIGURA 9 - CURVA PERCENTUAL APROXIMADA USADA NA AFERIÇÃO DO MODELO DE ALFRED. DO PERCENTUAL DE CADA GRANULOMETRIA.	52
FIGURA 10 - FUNÇÕES DE ATIVAÇÃO UTILIZADAS EM ORDEM DA ESQUERDA PARA DIREITA: RELU, LINEAR E SIGMÓIDE.	54
FIGURA 11 - INFLUÊNCIA DA TAXA DE TREINAMENTO E <i>EPOCH</i> NA PERDA DA REDE NEURAL.	55
FIGURA 12. TAMANHO DO BATCH SIZE E SUA QUANTIDADE DE ITERAÇÕES POR EPOCH.....	56
FIGURA 13 - CAMADAS UTILIZADAS NA REDE NEURAL, SENDO A INICIALIZAÇÃO COM 204 VARIÁVEIS DAS 201 AMOSTRAS E PROSEGUINDO COM AS CAMADAS OCULTAS EM SEQUÊNCIA “RELU” (32 NEURÔNIOS), LINEAR (16 NEURÔNIOS), SIGMÓIDE (32 NEURÔNIOS) E UMA SAÍDA “SIGMÓIDE” (1 NEURÔNIO).	58
FIGURA 14 - ESQUEMAS VISUAIS DO MÉTODO SVM ATRAVÉS DE HIPERPLANOS, ONDE O VALOR DO ERRO É DEFINIDO PELO AJUSTE ENTRE OS DIFERENTES CLUSTERS.....	59
FIGURA 15 - AJUSTES DE CURVAS E SUA RESPECTIVA FUNÇÃO DE AJUSTE, ONDE O AJUSTE LINEAR É LIMITADO PELOS PONTOS INSERIDOS.....	60
FIGURA 16 - EXEMPLO HIPOTÉTICO DE ÁRVORE DE DECISÃO, ONDE SÃO INSERIDAS AS VARIÁVEIS DE GRANULOMETRIA E RAZÃO DE ASPECTO.	61
FIGURA 17 - GRANULOMETRIAS AFERIDAS POR DIFRAÇÃO À LASER UTILIZANDO A TÉCNICA DE MIE.	64

FIGURA 18 - RAZÃO DE ASPECTO DAS GRANULOMETRIAS ANALISADAS.	65
FIGURA 19 - SOLIDEZ DAS GRANULOMETRIAS ANALISADAS.	67
FIGURA 20 - ESFERICIDADE DAS GRANULOMETRIAS ANALISADAS.	69
FIGURA 21 - VALORES DE DIMENSÃO FRACTAL PARA AS MATÉRIAS-PRIMAS TESTADAS.	70
FIGURA 22 - CORRELAÇÃO DO EMPACOTAMENTO COM A MASSA DE AMOSTRA, DEVIDO AO MENOR NÍVEL DE TRABALHO EXECUTADO POR COLUNA. O DIÂMETRO DA MATRIZ É CONSTANTE E IGUAL A 35 MM.	71
FIGURA 23 - REGIÃO DE ÓTIMO DE CORRELAÇÃO A PARTIR DE 1,5 DE RAZÃO DE ASPECTO.	72
FIGURA 24 - SOLIDEZ E EMPACOTAMENTO, COM A ALTERAÇÃO DE CORRELAÇÃO ENTRE 0,725 E ~0,85.	74
FIGURA 25 - A ESFERICIDADE E EMPACOTAMENTO, ONDE HÁ UM PONTO DE VIRADA EM 0,55 PARA AUMENTO DO EMPACOTAMENTO NO CONTEXTO POLIDISPERSO.	74
FIGURA 26 - A GRANULOMETRIA E SUA CORRELAÇÃO COM O EMPACOTAMENTO, ONDE HÁ UMA REGIÃO GRANULOMÉTRICA DE CORRELAÇÃO DIRETA ENTRE 150 E 700 μM	75
FIGURA 27 - ERRO PADRÃO MÉDIO (<i>LOSS</i>) NO EIXO VERTICAL PELA QUANTIDADE DE INTERAÇÃO (<i>EPOCH</i>) NO EIXO HORIZONTAL.	76
FIGURA 28 - MEDIDAS EXPERIMENTAIS E O VALOR ESTIMADO PELOS MODELOS DE ML. A RETA OBTIDA DO AJUSTE AOS DADOS SE ENCONTRA EM UM INTERVALO DE CONFIANÇA DE 95%.	77

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	13
2	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA E DESCRIÇÃO DO PROBLEMA CIENTÍFICO 17	
2.1	MODELOS CONVENCIONAIS DE EMPACOTAMENTO	17
2.1.1	Andersen e Andreasen	18
2.1.2	Furnas	20
2.1.3	Funk & Dinger	22
2.1.4	Modelo de empacotamento de De Larrard et al.	24
2.1.5	Efeito da parede do molde	29
2.2	MODELOS DE SIMULAÇÃO COMPUTACIONAL	30
2.3	VARIÁVEIS QUE AFETAM O EMPACOTAMENTO	32
2.3.1	<i>Composição granulométrica</i>	32
2.3.2	<i>Escalabilidade do tamanho de partículas</i>	33
2.3.3	<i>Razão de aspecto (RA)</i>	34
2.3.4	<i>Esfericidade</i>	35
2.3.5	<i>Processo</i>	37
2.3.6	<i>Sumário de variáveis que afetam o empacotamento</i>	37
2.4	<i>MACHINE LEARNING</i>	38
3	OBJETIVOS	41
4	METODOLOGIA.....	43
4.1	SELEÇÃO DE MATÉRIAS-PRIMAS	44
4.2	MOAGEM DO VIDRO	45
4.3	PICNOMETRIA	45
4.4	SEPARAÇÃO GRANULOMÉTRICA POR PENEIRA	46
4.5	GRANULOMETRIA	46
4.6	MICROSCOPIA ÓPTICA.....	47
4.7	EMPACOTAMENTO	50
4.8	REDE NEURAL	52
4.9	<i>SUPPORT VECTOR MACHINE</i>	58

4.10	<i>RANDOM FOREST TREE</i>	61
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO	63
5.1	GRANULOMETRIA POR DIFRAÇÃO À LASER	63
5.2	RAZÃO DE ASPECTO POR MICROSCOPIA ÓPTICA	64
5.3	SOLIDEZ POR MICROSCOPIA ÓPTICA	66
5.4	ESFERICIDADE	68
5.5	DIMENSÃO FRACTAL	70
5.6	EMPACOTAMENTO	71
5.7	VARIÁVEIS DE INTERESSE	72
5.8	EMPACOTAMENTO PREVISTO PELAS REDES NEURAI E COMPARAÇÃO COM EXPERIMENTOS	75
6	CONCLUSÕES	79
7	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	81

1 Introdução

O estudo do empacotamento de partículas objetiva antever e/ou determinar o grau de preenchimento de um volume por partículas. É um fator crucial no processamento de materiais cerâmicos a partir das matérias-primas em pó. O fenômeno pode ser descrito como a ocupação física de um dado espaço por partículas, minimizando-se os interstícios não preenchidos em uma condição de contorno volumétrica. A importância deste assunto remonta à Grécia Antiga, onde os primeiros teóricos buscaram a maximização da ocupação de um espaço bidimensional através do preenchimento dos interstícios formados por círculos não sobrepostos e tangentes por círculos cada vez menores. O problema, conhecido como empacotamento apoloniano em homenagem a Apolônio de Perga que viveu entre 262 e 194 a.C., foi reformulado e generalizado por G. W. Leibniz no século XVII¹. As soluções do problema para os casos bidimensional e tridimensional foram encontradas por diversos autores^{2,3}, além de estendidas a dimensões fractais⁴.

Ao final do século XIX, foi revelada a relação direta entre o empacotamento das partículas das matérias-primas e a resistência à compressão de concretos cerâmicos^{5,6}. Observou-se que, frequentemente, quanto maior o empacotamento, maior a resistência à compressão do concreto, fator chave na construção civil, onde a resistência à compressão determina o dimensionamento estrutural de inúmeros projetos, bem como permite a diminuição da pasta/argamassa no traço do concreto. Analogamente em casos de sinterização em materiais cerâmicos, a diminuição da fase líquida e de porosidade ocorre quando há um elevado empacotamento, ou seja, exige menos tempo de sinterização para um resultado semelhante de porosidade no produto final⁷.

Os primeiros autores^{6,8,9,10,11,12,13,14,15} na área de empacotamento visaram modificar a distribuição granulométrica com o intuito apenas de alcançar o melhor empacotamento. Alguns dos modelos apresentaram ajustes contínuos de variáveis^{6,8,11,15}, enquanto outros foram baseados em valores discretizados^{13,14}. No início do século XX, as curvas ajustadas de forma discreta eram utilizadas devido às limitações dos métodos de caracterização do tamanho de partículas, em geral realizada por peneiras granulométricas. Com o aprimoramento do arcabouço teórico pela contribuição de vários autores, os modelos baseados em progressões geométricas do tamanho de partículas foram ganhando espaço. Ainda hoje, as principais normas para concretos na construção civil adotam metodologias de distribuição ótima de tamanhos de agregados visando o

máximo empacotamento, sem considerar parâmetros de processo, devido à facilidade dos métodos de peneiramento e à simplicidade do controle granulométrico de partículas por peneiras. Entretanto, tais modelos não consideram fatores relevantes como a rugosidade e o fator de aspecto das partículas.

A melhoria dos processos de caracterização de partículas, com o aumento da resolução na determinação do tamanho e morfologia de partículas cada vez mais finas, e o advento de recursos computacionais mais poderosos proporcionaram a criação de modelos mais completos e métodos de simulação de empacotamentos. Pôde-se a partir disso considerar o efeito de variáveis que antes eram negligenciadas como diâmetros mínimo e máximo, razão de aspecto, distribuição granulométrica contínua, interações entre as partículas e efeitos reológicos. A compreensão do processo de empacotamento avaliado de forma simplista pelos autores do início do século XX sofreu um avanço notório.

A maioria dos modelos no início do século XXI se concentrou em retificar os efeitos dos parâmetros anteriormente conhecidos, adicionar novos parâmetros (como esfericidade, rugosidade, razão de aspecto, densidade, convexidade das partículas etc.) e efeitos de interação, culminando em modelos de inteligência artificial.

Atualmente, os modelos tornaram-se mais intrincados e específicos para determinadas áreas de aplicações, por exemplo, em concretos cerâmicos. Com isso, a consideração analítica do problema de empacotamento esbarra no crescente número de variáveis e na complexidade entre suas relações.

Um agravante na análise teórica é a consideração conjunta da geometria e interação de muitas partículas, que leva a sistemas cada vez mais caóticos e de solução analítica impossível. Com isso, o uso de métodos de inteligência artificial e simulação surgem como alternativa. Tais modelos são capazes de considerar o elevado volume de dados obtidos na caracterização das partículas, além de inúmeras outras peculiaridades das matérias-primas e dos processos de fabricação.

Neste contexto, este trabalho teve como objetivo continuar o desenvolvimento de um algoritmo de inteligência artificial para a previsão do empacotamento de partículas realizado em um trabalho prévio, avançando na correlação entre os dados de empacotamento e variáveis de processamento e desempenho de materiais cerâmicos.

Planeja-se ainda analisar os casos de produção de geopolímeros e vitrocerâmicas sinterizadas para a construção do algoritmo.

2 Revisão bibliográfica e descrição do problema científico

A seguir são apresentados brevemente alguns dos principais modelos de empacotamento, para contextualizar, e no final o modelo de De Larrard que orientou a seleção de variáveis para a construção de redes neurais no presente trabalho.

2.1 Modelos convencionais de empacotamento

Feret (1892)⁵ foi um dos primeiros a correlacionar a resistência à compressão de concretos cerâmicos ao empacotamento de partículas, concluindo que a resistência à compressão máxima é atingida minimizando-se os vazios gerados pelo empacotamento dos agregados de uma dada composição granulométrica, ou seja, maximizando-se a densidade de empacotamento do material particulado.

Um pouco mais tarde, Fuller & Thompson (1907)⁶ propuseram que o máximo empacotamento de partículas em concretos cerâmicos resulta de uma distribuição contínua de tamanhos de partículas, crescente em progressão geométrica, cuja trabalhabilidade (escoamento da mistura em molde) seria superior e com menor segregação que as de distribuições granulométricas discretas. O modelo de Fuller & Thompson é dado pela Eq. (1).

$$CPFT (\%) = 100 \left(\frac{D}{D_{max}} \right)^q \quad (1)$$

Na Eq. (1), *CPFT (%)* (do inglês *Cumulative Percentage Finer Than*) é a fração acumulada de partículas com diâmetros menores (mais finas) que um dado tamanho de partícula, *D*, tal que $D \leq D_{max}$, o diâmetro máximo de partícula da distribuição, e *q* é o quociente da progressão geométrica.

Desde então, a curva de Fuller & Thompson (1907)⁶ serviu como base para diversos autores na área de empacotamento, como Andreasen & Andersen (1928-1930)^{9,10,11}, Talbot & Richart (1923)⁸, Furnas (1929,1931)^{12,13} e Funk & Dinger (1980-1994)^{16,17,18}. Talbot & Richart (1923)⁸, por exemplo, usaram o modelo de Fuller & Thompson (Eq. 1) no ajuste de agregados em concretos, com um ajuste de $q = 0,5$.

Tais modelos, no entanto, indicam apenas a distribuição de diâmetros de partículas que, em tese, alcançaria o máximo empacotamento e não permitem calcular diretamente

o empacotamento das partículas como uma fração do volume total ocupado pela composição granulométrica, considerando seus interstícios vazios.

Uma dificuldade prática na aplicação do modelo de Fuller & Thompson é a necessidade de uma distribuição contínua de tamanhos de partículas abaixo de D_{max} , quando as matérias-primas reais se apresentam entre certos limites máximo e mínimo de tamanhos de partículas. Outra limitação é o fato da Eq. (1) ser notoriamente independente da escala da granulometria, isto é, considera que partículas com tamanhos da ordem de microns, milímetros ou centímetros se comportam de formas semelhantes. No entanto, o empacotamento de partículas finas (de diâmetros relativamente menores) é claramente diferente do de partículas grossas (de diâmetros maiores), uma vez que possuem diferentes razões superfície/volume e o efeito do atrito por contato entre partículas finas acaba sendo maior que o em uma mesma massa de partículas mais grossas, pois o número de contatos é mais numeroso.

2.1.1 Andersen e Andreasen

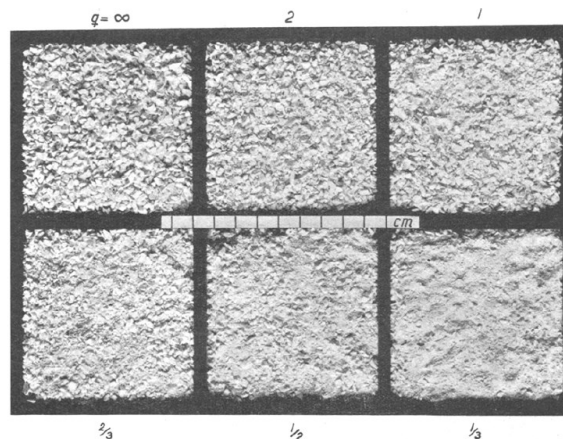
Com base nas publicações de Fuller & Thompson (1907)⁶ e Furnas (1931)¹³ (detalhado na próxima seção), Andersen & Andreasen (1928-1930)^{9,10,11} construíram um modelo empírico de ajuste de curvas de granulometrias polidispersas contínuas a partir de componentes de tamanhos discretos, sugerindo que o valor de q na Eq. (1) que maximiza o empacotamento encontra-se entre $1/3$ e $1/2$.

Interessante observar que as estimativas de Andreasen & Andersen não divergem do valor calculado modernamente utilizando geometria fractal para o empacotamento de esferas em 3 dimensões, que pode ser estimado pelo inverso da dimensão fractal determinada por Borkovec⁴, conforme a Eq. (2).

$$q = \frac{1}{2,473946} \approx 0,404212 \therefore q \in \left[\frac{1}{3}, \frac{1}{2} \right] \quad (2)$$

Andersen & Andreasen¹¹ estimaram o valor de q que maximiza o empacotamento através da análise visual de compactos de misturas de areia para moldes e vidro em pó, mostradas na Figura 1, observando que a menor porosidade (indicada pelas superfícies mais lisas) ocorre quando $1/3 \leq q \leq 1/2$.

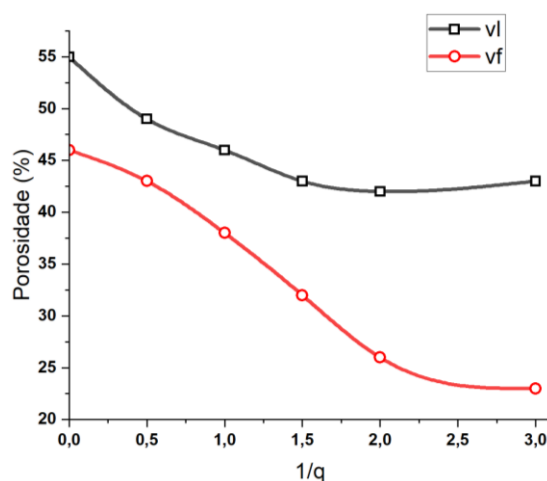
Figura 1 – Compactos obtidos a partir de matérias-primas com diferentes razões de progressão geométrica q , onde os valores de $q = 1/2$ e $1/3$ resultaram em menores porosidades.



Fonte: Adaptado de Andreasen & Andersen (1930)¹¹.

A Figura 2 mostra os resultados de Andreasen & Andersen para diversas misturas granulométricas (diferentes q obtidos ajustando-se a Eq. (1) às diversas distribuições granulométricas), em que v_l é a porosidade do corpo formado pelo empacotamento em um volume por partículas lançadas sem compactação e v_f é a porosidade do compacto após a compactação por batimento manual do recipiente na bancada. Observa-se novamente que v_f é mínimo para valores de q entre $1/3$ e $1/2$, concordando com a análise visual da Figura 1.

Figura 2 – Porosidade em função do coeficiente de progressão geométrica, q , de diferentes misturas de areia e vidro moído, com valor mínimo entre $[1/2, 1/3]$.



Fonte: Adaptado de Andreasen & Andersen (1930)¹¹.

Há críticas sobre o trabalho de Andreasen & Andersen pelo tratamento empírico baseado na análise visual dos compactos gerados por diferentes misturas granulométricas,

assumindo que o tamanho das partículas varia em progressão geométrica com coeficiente de progressão q . Para muitos, o ajuste de Andreasen & Andersen é muito rigoroso na prática, pois assume a possibilidade da consideração de finos ilimitadamente, não considerando a existência de limites mínimos para os tamanhos de partículas dos componentes da mistura granulométrica.

Andreasen & Andersen⁹⁻¹¹ buscaram também um ajuste mais preciso do expoente q que maximiza o empacotamento.

De forma geral, Andersen & Andreasen consideraram um limite máximo de tamanho de partícula, uma fração infinita de finos, que a forma das partículas é independente do tamanho, ou seja, a morfologia das partículas pequenas é a mesma das partículas grandes, e que o tamanho das partículas decresce em progressão geométrica.

O modelo de Andersen & Andreasen dá um peso muito grande a partículas finas, levando Funk & Dinger¹⁸ a limitar a influência de finos e considerar a falta de ajuste como porosidade residual.

Por sua vez, os modelos de Andersen & Andreasen¹¹ e de Furnas¹³, detalhado a seguir, se diferenciam na forma como consideram a granulometria. Andersen & Andreasen preveem a ótima distribuição contínua de tamanhos de partículas para máximo empacotamento, enquanto Furnas considera a ótima distribuição discreta.

2.1.2 Furnas

Furnas (1928)¹² considerou inicialmente o cálculo do volume específico de misturas binárias, posteriormente estendendo o modelo a misturas multicomponentes pela introdução da eficiência de empacotamento máxima¹³, que corresponde à uma combinação das eficiências de empacotamento de cada classe granulométrica, individualmente.

O modelo de Furnas supõe que partículas menores preenchem exatamente o tamanho dos espaços vazios do empacotamento dos grãos maiores, permitindo o máximo empacotamento da mistura após N iterações. A limitação desta abordagem está na dificuldade de se obter na prática as partículas de tamanhos monodispersos previstas pelo modelo, motivando a extensão da solução discreta para o caso contínuo. Em seu ajuste, Furnas mantinha a abordagem granulométrica discreta^{12,13}, ou seja, previa o

empacotamento de partículas coletadas entre peneiras em proporções de tamanhos discretos médios conhecidos.

Furnas definiu a eficiência de empacotamento máxima ϕ_{max} , Eq. (3), composta pelas eficiências de empacotamento dos grãos grossos ϕ_g , médios ϕ_m e finos ϕ_f , onde PE é a razão entre o volume ocupado pelas partículas e o volume total do espaço, considerando os espaços vazios médios ϕ_m e finos ϕ_f .

$$\phi_{max} = \phi_g + (1 - \phi_g)\phi_m + (1 - \phi_m)(1 - \phi_g)\phi_f \quad (3)$$

O modelo de Furnas considera que os espaços vazios são ocupados por partículas cujos diâmetros correspondem exatamente aos diâmetros dos espaços, permitindo um máximo empacotamento da mistura para N iterações do modelo. A limitação desta abordagem está na dificuldade de se obter as monodispersões previstas pelo modelo para preencher os vazios exatamente, sendo necessária a extensão da solução discreta para o caso contínuo. A progressão geométrica idealizada por Furnas é dada pela Eq. (4).

$$CPFT (\%) = 100 \frac{r^{\log d} - r^{\log d_{min}}}{r^{\log D_{max}} - r^{\log d_{min}}} \quad (4)$$

Onde as variáveis são descritas como:

- r é a razão entre o volume de material retido entre duas peneiras consecutivas e o volume na próxima peneira menor, quando os tamanhos das peneiras variam de um fator $\sqrt{2}$;
- d diâmetro de partícula;
- d_{min} diâmetro da menor partícula;
- D_{max} diâmetro máximo de partícula.

Para uma descrição contínua, a distribuição acumulada de tamanhos, $CPFT$, considera a contribuição de todos os tamanhos em uma só expressão, conforme a Eq. (4) proposta por Furnas (1931)¹³. Exprime-se r como função das variáveis tabeladas, sendo elas descritas pela Eq.(5).

$$r = \frac{1}{\frac{n}{V_m}} \quad (5)$$

- n é o número de componentes da mistura para o máximo de empacotamento, sendo ele tabelado¹³ em função da fração de vazios V e a razão entre o menor e o maior diâmetro de partícula da mistura;
- m é o número de peneiras entre o limite máximo e mínimo do tamanho das partículas.

Apesar das limitações, esta abordagem é prática pela facilidade de se considerar as massas retidas em cada peneira. No entanto, a obtenção dos valores de r é intrincada, necessitando do volume de vazios no empacotamento das partículas de cada classe, da razão entre os espaçamentos das malhas de peneiras subsequentes, e o volume retido entre elas.

2.1.3 Funk & Dinger

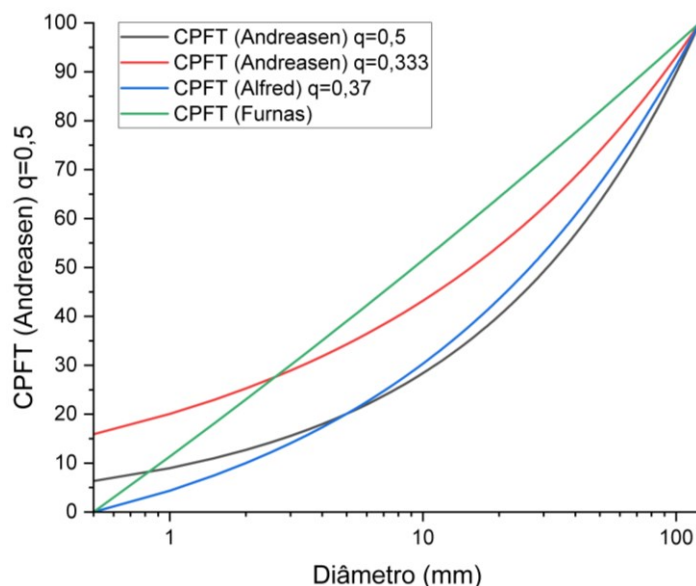
Mais recentemente, Funk & Dinger (1980)¹⁶ notaram que a proposta de Andersen & Andreasen é idealizada ao considerar tamanhos infinitamente pequenos, levando-os a diminuir a influência de finos e considerar a falta de ajuste como porosidade residual^{16,17,18}. Buscando um modelo mais preciso e aplicável, evitando a alta fração de finos, Funk & Dinger elaboraram um modelo híbrido entre os modelos supracitados, dado pela Eq.(6). Esse modelo de três parâmetros inclui o coeficiente de progressão q , além da variável d , diâmetro de partícula.

$$CPFT (\%) = 100 \frac{d^q - d_{min}^q}{D_{máx}^q - d_{min}^q} \quad (6)$$

A Eq.(6) também é conhecida como Curva de Alfred, nome da universidade onde foram realizadas as pesquisas e a formação acadêmica do autor J. E. Funk. Os autores também estimaram que o maior empacotamento pode ser encontrado quando $q = 0,37$ na equação proposta¹⁸, semelhante ao encontrado por Andreasen & Andersen¹¹ e modernamente a partir da geometria fractal de empacotamentos ideais de esferas. A Figura 3 compara as curvas ideais dos modelos supracitados, onde o modelo de Furnas

foi aplicado com r igual a 1,10, Andreasen com o fator de ajuste q está coerente com os limites anteriormente citados e a curva de Funk e Dinger (Alfred) foi ajustada utilizando o modelo computacional ótimo¹⁷.

Figura 3 - Comparação entre as curvas acumuladas ótimas de diferentes modelos de empacotamento de partículas, sendo o diâmetro em escala logarítmica.



Fonte: Elaborado pelo autor.

É importante ressaltar que os ajustes das equações acima aos dados experimentais para determinação de q e comparação de diferentes misturas de matérias-primas são de grande valia, tendo-se o cuidado de considerar as diferentes metodologias.

Alguns dos modelos acima, como o de Funk & Dinger e Andersen & Andreasen, são muito usados ainda hoje, mas permitem apenas buscar a granulometria que resulta no empacotamento máximo das partículas, sem considerar efeitos de processamento e o desempenho final dos materiais produzidos.

A compreensão teórica da natureza do empacotamento de partículas aumentou recentemente com o advento da geometria fractal³, encontrando-se similaridade entre os fenômenos de empacotamento e casos particulares de geometria fractal. Considerando a geometria fractal^{3,4}, modelos ideais de empacotamento de esferas confirmaram a suposição do aumento do tamanho de partículas em progressão geométrica para o máximo preenchimento do espaço, resultando em $q = 0,404$, Eq. (2), muito próximo ao estimado por Andersen & Andreasen¹¹ e Funk & Dinger¹⁸.

Vários outros autores posteriormente sugeriram aprimoramentos aos modelos de empacotamento. Não cabe aqui uma revisão exaustiva sobre o assunto. No final do século XX, De Larrard et al.^{19,20,21} propuseram um modelo que admite o efeito de variáveis de processo no empacotamento de partículas. Este modelo será analisado a seguir.

2.1.4 Modelo de empacotamento de De Larrard et al.

De Larrard et al.¹⁹⁻²¹ desenvolveram um método de determinação do empacotamento de misturas de partículas a partir de suas granulometrias, sem limitar o número de componentes (matérias-primas) ou distribuição de tamanhos, considerando também os efeitos de variáveis de processo e outras características das partículas, como variáveis morfológicas e rugosidade. Diferente dos modelos descritos anteriormente, que apontam apenas a distribuição de tamanhos de partículas que resulta no empacotamento máximo, este método permite calcular o próprio empacotamento, na forma da fração em volume ocupada pela mistura de partículas. O modelo de De Larrard et al. também é chamado de Modelo de Empacotamento Compressível (CPM, da sigla em inglês).

De Larrard (1999)²⁰ definiu a fração de porosidade, π , de um sólido como o complementar da fração volumétrica ocupada pelos sólidos, ϕ , ou seja, a porosidade é dada pelo volume unitário (100% do volume ocupado) menos a fração volumétrica ocupada pelo sólido particulado, de acordo com a Eq. (6).

$$\pi = 1 - \phi \quad (6)$$

O índice de vazios e de uma mistura granular pode ser então definido como a razão entre a porosidade π e o volume de sólidos ϕ , conforme a Eq. (7).

$$e = \frac{\pi}{\phi} = \frac{1}{\phi} - 1 \quad (7)$$

É intuitivo observar que o empacotamento ou compacidade de uma mistura polidispersa de partículas dependerá intrinsecamente:

- do tamanho das partículas (dado por sua distribuição granulométrica);
- da morfologia das partículas (variáveis de forma, estado de superfície); e
- da maneira como o empacotamento é realizado (método de

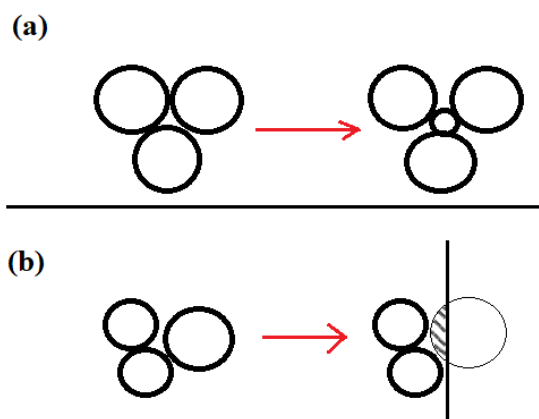
processamento).

De Larrard²⁰ cita que a maioria dos trabalhos prévios utilizava modelos de empacotamento para encontrar uma distribuição granulométrica teórica ótima, que posteriormente buscava-se alcançar experimentalmente. O desvio do empacotamento real, obtido experimentalmente, é utilizado em seu modelo para estimar fatores de processo e morfológicos.

De Larrard²⁰ definiu empacotamento virtual, γ , como o empacotamento ideal alcançado considerando-se inicialmente apenas a fração de cada granulometria na mistura, sem considerar efeitos de processamento. Por exemplo, o empacotamento (fração ocupada do volume) ideal máximo de esferas rígidas de mesmo tamanho que se tangenciam, como o dos ordenamentos cúbico de face centrada (CFC) e hexagonal compacto (HC), é aproximadamente 0,74. Na prática, o empacotamento real de um arranjo randômico de esferas de mesmo tamanho apresenta compactação máxima de 0,60 a 0,64²².

Partículas de tamanhos diferentes em uma mistura exercem efeitos parede²⁴ (Figura 4a) e de afastamento²⁰ (Figura 4b), dependendo de seu tamanho relativo, aumentando a porosidade da mistura. Partículas grandes causam diminuição de porosidade por efeito parede no empacotamento de partículas menores. Por outro lado, partículas pequenas causam diminuição da porosidade por efeito de afastamento no empacotamento de partículas maiores.

Figura 4 - Efeito de afastamento (a) e parede (b), onde parte das partículas se afastam devido a inserção de uma partícula mais fina no espaçamento formado pelo seu empacotamento, e parte do volume da partícula é retirado do meio contínuo na interface com a introdução de uma partícula mais grossa (cuja superfície é representada na figura pela linha vertical).



O empacotamento virtual de De Larrard, γ , é descrito considerando-se os efeitos de todas as classes de granulometrias presentes na mistura, com os respectivos efeitos parede e de afastamento. Pode-se encontrar uma coleção de empacotamentos virtuais γ_i para cada classe i de partículas de uma distribuição de tamanhos, dependendo do efeito que as demais partículas j presentes exercem. Considerando, por exemplo, uma mistura de 3 classes de tamanhos de partículas, representadas pelos correspondentes diâmetros médios d_1 , d_2 e d_3 , tal que:

$$d_1 \geq d_2 \geq d_3 \quad (8)$$

as partículas da classe 2 sofrem um efeito de afastamento das partículas da classe 1 e exercem um efeito parede nas partículas da classe 3.

O empacotamento virtual γ , de agora em diante denominada simplesmente densidade de empacotamento, pode ser expresso como uma função do empacotamento real das partículas de cada classe de tamanho, ϕ_i , conforme descrito na Eq. (9), seus respectivos efeitos $\lambda_{j \rightarrow i}$ que são citados pelo autor como efeitos de afastamento a_{ij} e parede b_{ij} , introduzidos na Eq.(10), e um empacotamento residual β_i que será descrito posteriormente.

$$\gamma = \phi_1 + \phi_2 + \phi_3 \quad (9)$$

As expansões das expressões para cada classe de partícula i e seus respectivos valores de empacotamento real devem ser feitas em todos os casos em que se encontra o empacotamento virtual mínimo. Este valor mínimo é utilizado no cálculo do empacotamento real γ_i .

As partículas i sofrem o efeito de afastamento de todas as demais partículas menores e efeito parede de todas as maiores. De Larrard propôs que há uma classe dominante i para a qual γ_i é mínimo $\gamma = \min(\gamma_i)$, que consiste na densidade de empacotamento ou empacotamento virtual γ da mistura. Assim, para a mistura definida pela Eq. (8), a densidade de empacotamento pode ser expressa pela Eq. (10).

$$\gamma_2 = \frac{\beta_2}{1 - \left[1 - \beta_2 + b_{21}\beta_2 \left(1 - \frac{1}{\beta_1} \right) \right] y_1 - (1 - a_{23} \frac{\beta_2}{\beta_3}) y_3} \quad (10)$$

onde y_1 e y_3 são as frações volumétricas da classe.

A expressão linear dos efeitos de interação entre todas as classes de tamanhos de partículas exemplificada pela Eq.(10) permite encontrar os efeitos de afastamento e parede de cada classe. Neste caso o valor de empacotamento virtual, expandido para a classe 2 na Eq.(10), deve ser expandido para todas as n classes granulométricas de uma mistura de partículas, Eq. (11), cujo mínimo será de fato a densidade de empacotamento.

$$\gamma = \min (\gamma_i) = \min \left(\frac{\beta_i}{1 - \sum_{j=1}^{i-1} \left[1 - \beta_i + b_{ij} \beta_i \left(1 - \frac{1}{\beta_j} \right) \right] y_j - \sum_{j=i+1}^n \left[1 - a_{ij} \frac{\beta_i}{\beta_j} \right] y_j} \right) \quad (11)$$

A Eq. (11) expressa o empacotamento resultante das combinações de efeitos de todas as classes de tamanhos de partículas em uma distribuição. O empacotamento virtual é o valor mínimo de γ_i . No entanto, alcançar o empacotamento virtual é impraticável e há necessidade de ajuste do modelo aos casos reais.

O empacotamento residual β_i corresponde ao empacotamento real das partículas de uma única classe de tamanhos e depende de fatores como a rugosidade e o formato das partículas. A informação discreta gerada por β_i é determinada experimentalmente para cada classe de partículas de diâmetro d_i . Para encontrar os valores residuais β_i é necessário considerar os fatores reais da medida no modelo de empacotamento compressível (CPM, da sigla em inglês).

Os métodos utilizados para encontrar o valor de empacotamento real são muito variáveis. Em geral, define-se um parâmetro K , exemplificado na Tabela 1, que corresponde ao efeito do processo no empacotamento.

Tabela 1 - Fatores de processo e os respectivos valores do fator K .

Modo de empacotar		K
À seco	derramando	4,1
	batendo com uma haste	4,5
	vibração	4,75
	vibração + compressão 10 kPa	9
Virtual	-	∞

Fonte: Adaptado De Larrard (1999)²⁰.

Recomenda-se, por exemplo, utilizar $K = 9$ para encontrar o valor real do empacotamento produzido por vibração e compressão²⁰.

O procedimento²⁰ consiste em inserir uma massa seca M_s do material particulado em um recipiente cilíndrico de altura h e diâmetro ϕ , sendo que este diâmetro deve ser pelo menos cinco vezes maior que o diâmetro máximo das partículas utilizadas, e a densidade ρ_s do material deve ser conhecida. O conjunto é colocado para comprimir uniaxialmente o pó através de um êmbolo, cujo próprio peso aplica uma pressão de 10 kPa sobre o material particulado, em uma mesa vibratória, por 10 min. O empacotamento real é então calculado de acordo com a Eq.(12).

$$\phi = \frac{4M_s}{\pi\phi^2 h \rho_s} \quad (12)$$

Note que a Eq. (12) descreve a fração do volume ocupada por um sólido particulado, ou seja, o empacotamento real. No caso monodisperso, o cálculo é relativamente simples, todavia é restrito, pois a razão entre os diâmetros de i classes consecutivas não podem variar acima de 1,26, ou seja:

$$\frac{d_i}{d_{i+1}} < 1,26 \quad (13)$$

Neste caso, o empacotamento residual das i classes de partículas reduz-se a um valor de empacotamento residual médio $\bar{\beta}$

$$\bar{\beta} = \left(1 + \frac{1}{K}\right) \phi \quad (14)$$

O empacotamento residual médio $\bar{\beta}$ inclui o efeito do processo K no cálculo da densidade de empacotamento, uma vez que o esforço durante sua determinação pode variar com a forma como o empacotamento é realizado.

Para uma distribuição polidispersa, o modelo deve ainda considerar o efeito da parede do recipiente, k_w , pois é notório que o diâmetro do recipiente influencia o valor de porosidade residual de cada classe β_i . No entanto, para fins práticos, é suficiente a aproximação dada pela Eq.(15) para cada uma das classes de diâmetros das partículas inseridas.

$$\bar{\beta}_i = \left[1 - (1 - k_w) \left(1 - \left[1 - \frac{d_i}{\phi}\right]^2 \left[1 - \frac{d_i}{h}\right]\right)\right] \bar{\beta} \quad (15)$$

- $\bar{\beta}_i$ empacotamento residual médio i da amostra considerando o diâmetro da classe i e o fator k_w ;
- h altura da amostra;
- k_w coeficiente do efeito parede;
- \emptyset diâmetro do cilindro;
- d_i diâmetro médio das partículas da classe i ;
- $\bar{\beta}$ empacotamento residual médio

A norma indicada para a determinação da massa seca e compacidade de agregados é a ASTM C 29, onde o valor encontrado corresponde ao valor experimental do empacotamento real ϕ teórico.

O valor de k_w varia conforme o formato das partículas, que por sua vez depende da forma como foram produzidas, por exemplo, $k_w = 0,73$ para grãos triturados e $k_w = 0,88$ para grãos inteiros.

2.1.5 Efeito da parede do molde

Para mensurar o empacotamento da amostra se faz necessário mensurar o efeito parede na interface molde/amostra. Inicialmente considera-se no modelo uma distribuição monodispersa de diâmetro d e compacidade residual β . É possível definir um volume de interação ΔV com a parede do cilindro de diâmetro d . Para uma superfície perfeitamente plana, ΔV é dado pelo produto entre o diâmetro da partícula d e a superfície do recipiente S . Note que partículas de elevado diâmetro atuam como paredes de superfície S para partículas pequenas, e o efeito é estendida até o diâmetro do recipiente, sendo o efeito definido pela Eq.(16)²³.

$$\Delta V \propto Sd \quad (16)$$

A rugosidade e a irregularidade da parede do recipiente influenciam fortemente o empacotamento. Para corrigir este problema, Ben-Aïm (1970)²⁴ aprimorou o modelo utilizando o conceito de volume perturbado V_p a uma distância $\frac{d}{2}$ da superfície do recipiente. Nesse caso, a compacidade média $\bar{\alpha}$, ou seja, a densidade de empacotamento

média da amostra no recipiente é $k_w \cdot \alpha$, onde $k_w < 1$ e α é a densidade de empacotamento no centro do recipiente. A Eq.(17) mostra a relação que considera os efeitos da rugosidade e irregularidade da parede no empacotamento final.

$$\bar{\alpha} = [1 - (1 - k_w)V_p]\alpha \quad (17)$$

Para partículas esféricas, $k_w = \frac{11}{16}$ ajusta aproximadamente o modelo descrito na Eq. (17) aos valores experimentais encontrados por Bem-Aim (1970)²⁴. Portanto, no caso de pequenas amostras ou geometrias de grande razão superfície/volume (placas de baixa espessura) a densificação é menor, dado sua grande interação com o meio e sua área superficial específica elevada. A parede do molde exerce um efeito de amortecimento no material particulado, em que o aumento da distância da parede diminui a variação do empacotamento^{25,26,27}.

2.4.5 Empacotamento real

Em uma situação real, é necessário considerar os efeitos físicos de processamento no empacotamento de partículas. Sendo ϕ o volume unitário sólido total da mistura, dada a restrição de que $\phi < \gamma$, sendo K o fator de processo:

$$K = \sum_{i=1}^n K_i = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\frac{y_i}{\beta_i}}{\frac{1}{\phi} - \frac{1}{\gamma_i}} \right) \quad (18)$$

Calcular o empacotamento real ϕ se traduz em encontrar cada fração K_i . Assim, os dados necessários para encontrar o valor real são: a densidade de empacotamento γ_i , o empacotamento residual β_i e as frações volumétricas y_i de cada classe de tamanho de partículas na distribuição.

2.2 Modelos de simulação computacional

O avanço na computação permitiu que a simulação de corpos rígidos, principalmente sob esforços mecânicos como vibração e compressão, fosse aplicada à área de empacotamento de partículas. Com isso, correlações entre variáveis de forma e distribuição granulométrica, entre outras, puderam ser consideradas em modelos computacionais, baseados em resultados experimentais e de simulação determinados por

diversos autores, em busca de um modelo que predissesse o valor do empacotamento de partículas com uma dada distribuição de tamanhos.

Há ainda demanda por modelos que ajustem o empacotamento de partículas em casos diversos, como partículas coloidais e macroscópicas, e métodos de processamento específicos. Os modelos analíticos tendem a simplificar o problema, minimizando o número de variáveis, devido à elevada complexidade de formas de partículas, granulometrias, processos de misturas e significância estatística. Em contraste, medidas experimentais podem ser demoradas, multifatoriais e contar com repetições para determinação da margem de erro. As interações macro e micro normalmente são negligenciadas pelas simulações, visto que atualmente apenas simula-se o deslocamento mecânico do material particulado.

Os modelos de simulação computacional ganharam espaço no final do século XX com a popularização e aumento da capacidade dos computadores, permitindo que sistemas mais complexos fossem desenvolvidos e testados.

No caso de empacotamento de partículas, simulações de modelos bidimensionais foram as primeiras a tentar solucionar o problema de maximização do empacotamento de esferas em uma determinada área²⁸. Os resultados encontrados foram similares aos de empacotamentos binários²⁹ e distribuições contínuas³⁰.

Diversas correlações entre empacotamento e formato de partículas foram fundamentadas em simulações^{13,15,17,18,20,22,24,33}, uma vez que o efeito de componentes ideais no empacotamento simulado é perfeitamente modelável, ou seja, as amostras não contêm as variações de tamanho e forma encontradas nos casos reais. Há ressalvas, dado que simulações consideram amostras simplificadas em um modelo geral, enquanto há ainda uma série de fatores complementares nem sempre considerados, como variação da razão de aspecto, distribuições granulométricas distintas, diferentes métodos de moagem, escalabilidade dimensional e aglomeração. Por outro lado, as simulações oferecem alternativas às medidas experimentais, compensando altos custos por amostragem e baixa representatividade estatística.

Em seguida, algumas contribuições computacionais importantes serão descritas em tópicos isolados, dado que seus autores buscam tratar o efeito de variáveis únicas ou pouco multifatoriais, em contraste às características multivariadas nos casos de autores experimentalistas, considerando suas devidas limitações.

2.3 Variáveis que afetam o empacotamento

Há inúmeros fatores que alteram o empacotamento. Os estudos de diversos autores na área buscaram explicar e correlacionar os efeitos de misturas granulométricas, geometrias de partículas, processos de mistura, fatores reológicos, aditivos e tamanhos de partículas, entre outros. As diversas publicações consideram fatores experimentais e de simulação diferentes, devido ao elevado número de combinações granulométricas e de processos possíveis. No entanto, o processo mais comum de compactação consiste em submeter o material particulado à pressão e vibração controladas.

Existem também inúmeros métodos de caracterização de partículas, fundamental na determinação de propriedades essenciais para a compreensão e modelagem dos fenômenos de empacotamento. Em busca de averiguar as demandas técnicas atuais na área de empacotamento, são elencadas a seguir as principais variáveis que afetam o empacotamento, bem como algumas variáveis complementares.

2.3.1 Composição granulométrica

Feret (1892)⁵ foi o primeiro a correlacionar a melhora da resistência à compressão mecânica de concretos ao maior empacotamento da matéria-prima. A partir daí, os autores no tema buscaram formas de maximizar o empacotamento através de alterações granulométricas, sendo primordial os estudos de misturas de partículas para a otimização do empacotamento na prática. Confirmada a importância de minimizar a porosidade para maximizar a resistência mecânica de concretos, nas primeiras décadas do século XX, Fuller (1908)⁶, Andreasen & Andersen (1930)⁹⁻¹¹, Furnas (1931)¹³, Westman & Hugill (1930)^{14,15}, White & Walton (1937)³¹, Mc Geary (1961)³² e outros buscaram entender o processo de compactação de misturas de partículas com diferentes granulometrias. Além de considerar as curvas de empacotamento máximo, o problema foi reduzido ao estudo de misturas binárias de tamanhos de partículas com o objetivo de determinar a proporção das matérias-primas que resulta na menor porosidade.

Indo além, Talbot (1923)⁸ buscou correlacionar a adição de água e a diminuição de vazios, procurando a razão ótima entre agregados (areia) finos, grossos e cimento (misturas ternárias). Na mesma linha, Westman & Hugill^{14,15} foram pioneiros em tentar descrever a proporcionalidade do efeito dos componentes no empacotamento de misturas

binárias e ternárias, observando que a adição de aproximadamente 1/3 de finos resultava no máximo empacotamento de uma mistura binária com agregados grossos.

Sohn (1968)³³ indicou que o empacotamento tende a aumentar em misturas polidispersas, comparadas às binárias ou ternárias. Mesmo assim, observou que a proporção ótima dos componentes depende da razão entre seus diâmetros na proporção de 1/3 observada para misturas de granulometrias segmentadas.

Chang & Deng (2017)³⁴ buscaram descrever o empacotamento de misturas binárias de solos através de um modelo de esqueleto, isto é, considerando os contatos entre partículas finas e grossas, em que também avaliaram o fator de forma das partículas.

Averardi et al. (2020)³⁵ também buscaram modelar o empacotamento de diversas composições granulométricas, no caso de manufatura aditiva, uma vez que diferentes processos e métodos de manufatura afetam o empacotamento de forma diferente. Os autores concluíram que o comportamento de misturas polidispersas e discretas não podem ser modeladas igualmente e, principalmente, distribuições contínuas não possuem soluções analíticas simples, enquanto misturas de distribuições granulométricas discretas têm maior facilidade de equacionamento.

Com os devidos ajustes, muitos autores encontraram que o empacotamento é maximizado por composições granulométricas semelhantes e, através da validação de modelos binários e seus respectivos efeitos de processo no empacotamento, alguns utilizaram os resultados para extensão a sistemas de n componentes^{20,36,37,38}.

2.3.2 Escalabilidade do tamanho de partículas

No processamento de sistemas binários, notou-se que o empacotamento aumenta quando se misturam partículas de tamanhos muito distintos, ou seja, com uma razão elevada entre seus diâmetros^{13,14,15,32}.

Sohn (1968)³³, ao estudar distribuições granulométricas gaussianas e misturas binárias de partículas na escala de 300 a 3000 μm de diâmetro, concluiu que o empacotamento independe da escala de tamanho neste intervalo e inferiu que o fator de forma e a distribuição granulométrica são as variáveis mais importantes para o modelamento do empacotamento.

De forma geral, há uma certa limitação no modelamento do empacotamento de partículas finas, uma vez que é influenciado por inúmeras variáveis como aglomeração, umidade e superfície, tendo alguns modelos^{37,38} sido limitados à escala de 25 μm , aproximadamente.

Em suma, a escala de tamanho em si não é uma variável que altera o empacotamento, mas sim as interações das partículas entre si e com o meio.

2.3.3 Razão de aspecto (RA)

Razão de aspecto (RA) é a razão entre os comprimentos maior e menor de uma partícula ou de sua projeção no plano. Ela influencia diretamente o empacotamento das partículas, sendo um dos principais efeitos na chance das partículas se alinharem. Por exemplo, fibras muito longas atingem o máximo empacotamento quando alinhadas. Para isso, seria necessário um estímulo externo, improvável em empacotamentos formados pela disposição aleatória das partículas (fibras) durante o preenchimento do espaço.

Ayer & Soppet^{39,40} testaram o efeito do recipiente no empacotamento de partículas grossas esféricas e angulares de mesmas composições granulométrica, e observaram que o modelo no caso de partículas angulares necessita não somente de seus tamanhos, mas também dos fatores de forma, mostrando que o uso de modelos simplificados pode ser limitado. Apesar de não citarem especificamente a razão de aspecto, inferiram que partículas mais angulares tendem a produzir um empacotamento menor.

Milenski em 1973⁴¹ revelou em experimentos com esferas e fibras de vidro que o aumento da razão de aspecto eleva a presença de vazios. Entretanto, a porosidade é mitigada nos casos de misturas binárias em que os finos têm elevada razão de aspecto, ou seja, a RA possui pouca influência no efeito de partículas menores no empacotamento, quando misturadas a partículas maiores.

Zheng et al. (1990)⁴², ao realizarem um ajuste baseado em Funk & Dinger¹⁶, também observaram que para partículas de alta razão de aspecto é necessário um peso maior de finos na aproximação da curva granulométrica ideal, isto é, que possibilita o maior empacotamento.

Philipse (1996)⁴³, ao estudar o empacotamento e os contatos em misturas aleatórias de partículas coloidais, isto é, de dimensões entre 1 nm e 1000 nm⁴⁴, verificou

que a razão de aspecto era um fator limitante do empacotamento. O aumento da razão de aspecto diminui a concentração volumétrica de sólidos. Philipse também verificou uma correlação parecida para partículas em formato de discos. Posteriormente, Williams & Phillipse (2003) determinaram o efeito da razão de aspecto no intervalo de 1 a 100 e formularam uma equação para incluir esse fator no cálculo do empacotamento⁴⁵.

Wouterse et al. (2007)⁴⁶, através de simulações computacionais, concluíram que partículas com alta razão de aspecto dependem de vários fatores para empacotar (são mais sensíveis às variáveis de processo), enquanto o empacotamento de partículas de baixa razão de aspecto sofre pouca influência do processo. No empacotamento simulado de partículas esferocilíndricas, ou seja, de formato cilíndrico com calotas esféricas em ambas as extremidades, de mesmo tamanho, o máximo empacotamento é observado para coeficientes de aspecto (definidos pela razão comprimento/diâmetro) variando entre 1,2 e 1,4. Tal empacotamento também foi maior que o empacotamento aleatório de esferas de tamanhos monodispersos, cuja razão de aspecto é 1. No entanto, houve uma clara diminuição do empacotamento de partículas com razões de aspecto elevadas, independente da forma de esferocilindros, semiesferas ou esferoides⁴⁶.

Zhao et al. (2012)⁴⁷ encontrou o máximo empacotamento de esferocilindros de tamanhos iguais com a razão de aspecto de 0,5, ou seja, com diâmetro maior que o comprimento, e observou uma queda progressiva no empacotamento para razões maiores.

Hesse em 2021⁴⁸, ao utilizar partículas de diversas formas e razões de aspecto, concluiu que o empacotamento é máximo para cilindros com razão de aspecto entre 0,8 e 1,2, e elipsoides com razão de aspecto próxima a 0,5 ou 2.

Assim, em geral, partículas com elevada razão de aspecto aumentam a porosidade do empacotamento, sendo necessário considerar esse fator nos modelos de empacotamento. No entanto, para razões de aspecto baixas, algumas formas específicas como discos, esferocilindros e esferoides, entre outras fora da razão de aspecto 1, podem apresentar empacotamentos mais densos.

2.3.4 Esfericidade

A esfericidade (circularidade) é uma medida de quão esférica é a partícula e é vinculada à razão de aspecto, sendo definida pela razão entre o volume da partícula pelo

volume de uma esfera na qual a partícula é inscrita. Esse fator pode ser determinado exatamente no caso de simulações computacionais. Na prática, a esfericidade é estimada pela razão entre a área da projeção da partícula em um plano, e a área do círculo no qual a partícula é inscrita.

No entanto, Philipse (1996), ao analisar hastes finas, indicou que este parâmetro deve ser analisado isoladamente⁴⁹.

O valor de esfericidade não costuma variar muito para diferentes tamanhos de partícula.³³ Quanto maior a esfericidade, maior o empacotamento, todavia, o empacotamento de partículas com baixa esfericidade aumenta para distribuições mais largas. Portanto, a esfericidade não é um fator muito determinante do empacotamento³³. Alguns autores também analisaram o efeito da esfericidade indiretamente através da razão de aspecto, principalmente para esferocilindros.

Nos casos em que a esfericidade se torna um parâmetro importante na análise, Zou & Yu (1996)⁵⁰ propuseram modelos empíricos para determinar o diâmetro esférico equivalente para o empacotamento de partículas que tiveram seu diâmetro volumétrico determinado em peneiras com malhas conhecidas, em que a razão de aspecto e a esfericidade são desconsideradas.

Assim como com a razão de aspecto, a diminuição da esfericidade impacta de maneira negativa o empacotamento (correlação direta), conforme publicado por Kwan em 2001, que testou esfericidades entre 0,525 e 0,65.⁵¹ Para partículas soltas, a porosidade diminui com o aumento da esfericidade, já para partículas compactadas há um mínimo de porosidade, ou seja, um máximo de empacotamento⁵¹.

Meng et al. (2012)⁵² correlacionaram a esfericidade de esferocilindros, discos e cilindros com seus respectivos empacotamentos e observaram o maior empacotamento em 0,97 (esferocilindros), 0,80 (discos) e 0,85 (cilindros) de esfericidade.

Hesse et al. (2021)⁴⁸ simularam diversas formas de partículas de tamanho único e ratificaram que esfericidades próximas de 0,8 nas diversas formas atingiam o máximo empacotamento.

Em resumo, assim como a razão de aspecto, o efeito da esfericidade no empacotamento depende intrinsecamente do processo de empacotamento e da granulometria das partículas, entre outros fatores. Em distribuições monodispersas, o

empacotamento é máximo em faixas distintas de circularidade, dependendo das geometrias.

2.3.5 Processo

O empacotamento de um material particulado depende de vários fatores presentes no processo de compactação, tais como ordem de inserção dos componentes com diferentes granulometrias, pré-mistura, compressão, frequência de vibração, amplitude de vibração, gradiente de esforços, entre outros.

Andreasen & Andersen já em 1930 relataram que o processo poderia alterar a porosidade, após comparação de pós soltos e compactados. Independente da granulometria testada, o produto compactado apresentou menor porosidade que o do pó solto¹¹.

De Larrard (1999)²⁰, conforme explicitado anteriormente, através de um modelo reológico de alta concentração de sólidos adaptado⁵³, definiu um fator K para o efeito do processo (tabelado) no empacotamento²⁰.

Wu et al. (2017)²⁷ simularam o efeito da amplitude e frequência de vibração no empacotamento de esferas organizadas em diferentes agrupamentos, não encontrando uma correlação simples. A amplitude de vibração que produz o máximo empacotamento depende da frequência de vibração. Da mesma forma, a frequência para empacotamento máximo depende de sua amplitude

A maioria dos artigos de empacotamento inclui a vibração do particulado no processo de empacotamento, o que é razoável, pois a maximização do empacotamento exige aplicação de esforços mecânicos. Vale ressaltar que o processo de vibração de misturas de granulometrias significativamente diferentes pode causar gradientes de tamanho de partículas no produto (segregação), devido à convecção granular, também chamada de *Brazil nut effect*⁵⁴.

2.3.6 Sumário de variáveis que afetam o empacotamento

Pelo exposto, verifica-se que há vários fatores que afetam o empacotamento de partículas além de sua granulometria. Fatores tais como razão de aspecto, circularidade e

variáveis de processos devem ser consideradas em modelos de empacotamento. O reconhecimento desses fatores e a complexidade de seus efeitos no empacotamento motiva e justifica o uso de métodos computacionais, por exemplo, o *machine learning*, tratado a seguir.

2.4 *Machine Learning*

O avanço das técnicas de *machine learning* no início do século XXI promoveu inúmeras aplicações computacionais em diversas áreas, com potencial aplicação na área de empacotamento de partículas.

As redes neurais, um método de *machine learning*, vêm despertando interesse na predição do comportamento de materiais particulados juntamente com a simulação computacional, uma vez que, treinadas a partir das variáveis de modelamento descritas na literatura de empacotamento, conseguem prever o comportamento de partículas, não só o preenchimento do espaço limitado. A escalabilidade proibitiva das simulações e dos experimentos para a análise de propriedades combinatórias pode ser facilitada pelo treinamento de rede neurais.

As variáveis de forma, comportamento reológico e propriedades físicas das partículas são de suma importância para a construção de uma rede neural para empacotamento. Sutcu & Akkurt (2007)⁵⁵ realizaram o treinamento de uma rede neural utilizando MFFB (*multilayer feed forward backpropagation*) para prever porosidades e obtiveram um erro de 3,39% mesmo com um número baixo de valores experimentais e considerando apenas um parâmetro da distribuição granulométrica.

Singh et al. (2021)⁵⁶ analisaram o empacotamento de misturas granulométricas para a área de concretos através de redes neurais, utilizando parâmetros como densidade das partículas e granulometria para otimizar o empacotamento.

Gonzalez et al. (2020)⁵⁷, através das variáveis geradas por simulação, construíram uma rede neural que reproduzia o comportamento mecânico de misturas de areia e água, mostrando que o estudo do comportamento complexo das partículas e da mecânica estatística pode ser simplificado através de *deep learning*.

Dingqiang et al (2020)⁵⁸ usaram algoritmo genético e redes neurais para prever o empacotamento a úmido de concretos e gerar uma mistura de concreto de alta densidade.

Yang et al. (2021)⁵⁹, através de redes convolucionais de imagem com *Feature Pyramid Networks* (FPN), conseguiram determinar propriedades como rugosidade, razão de aspecto e angularidade de partículas individuais, contribuindo para a caracterização de partículas.

Hesse et al. (2021)⁴⁸, ao produzirem empacotamentos de aglomerados de esferas, estudaram o efeito da convexidade, esfericidade e razão de aspecto através da simulação via LIGGGHTS e modelagem através de redes convolucionais (CNN)⁴⁸.

3 Objetivos

Pelo exposto, verifica-se a oportunidade de se utilizar métodos de *machine learning* na previsão de empacotamento de partículas em misturas para processos de manufatura específicos, por exemplo, na fabricação de vitrocerâmicas sinterizadas ou geopolímeros.

Com isso em vista, os objetivos deste trabalho são

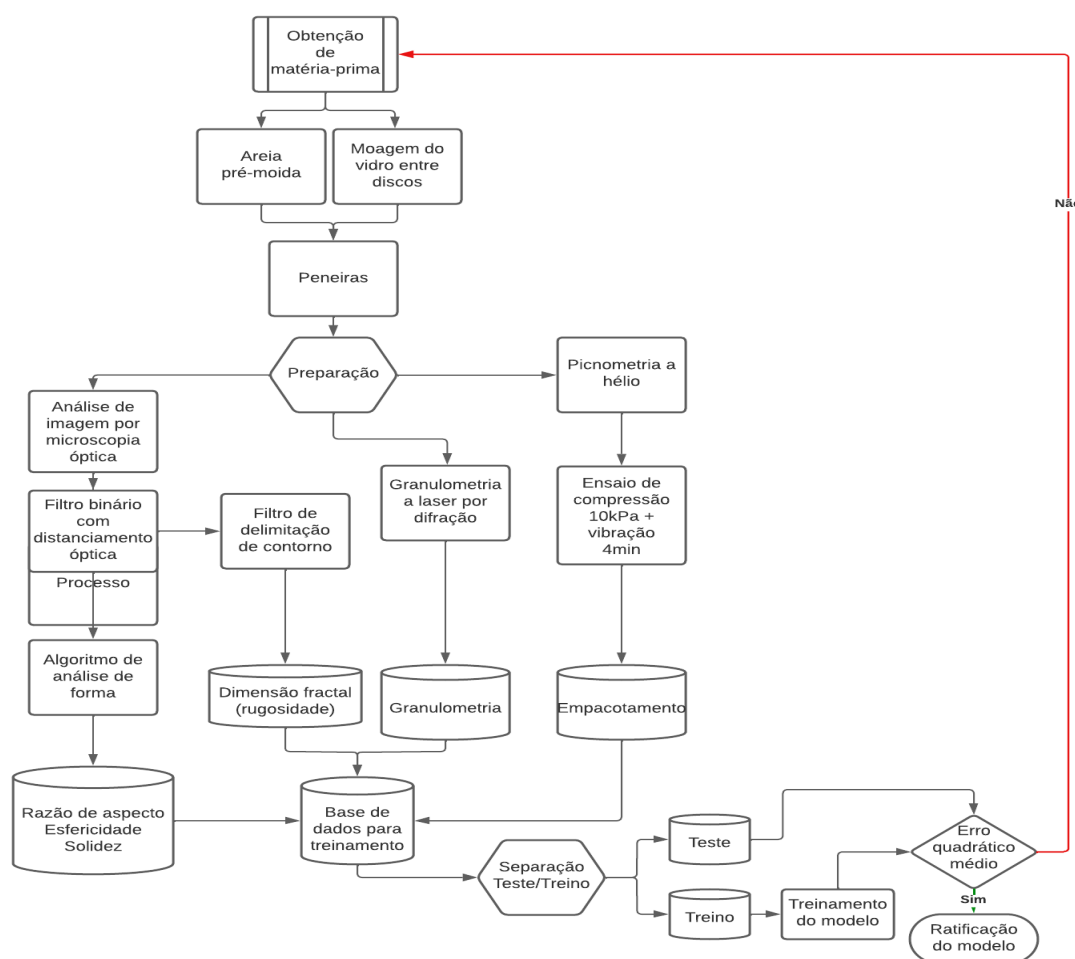
1. Treinar diferentes métodos de *machine learning* no empacotamento de partículas de vidro e areia com diferentes granulometrias, considerando as variáveis descritas nos modelos de empacotamento conhecidos, a saber, a granulometria das partículas, razão de aspecto, esfericidades, solidez e outras;
2. Determinar experimentalmente as densidades de empacotamento de classes de partículas com granulometria conhecida, e utilizá-las como variável de processo na construção dos métodos de *machine learning*;
3. Validar os métodos de *machine learning* construídos na previsão de densidade de empacotamento de classes de tamanhos de partículas de teste.

4 Metodologia

As variáveis consideradas no método de De Larrard foram utilizadas neste trabalho em um código de programação de acordo com o conceito de *deep learning* de aprendizado de máquina, utilizando a plataforma de códigos abertos Tensorflow, com o objetivo de criar um sistema para o cálculo de empacotamento de partículas considerando a granulometria e fatores de forma e processamento. É de suma importância considerar as variáveis que afetam o empacotamento, anteriormente citadas, no treinamento da rede neural.

A Figura 5 mostra o fluxograma utilizado na obtenção e caracterização das matérias-primas e treinamento de uma rede neural de predição de empacotamento e validação dos dados, indicando as variáveis necessárias e o passo a passo dos procedimentos utilizados.

Figura 5 - Fluxograma para o treinamento da rede neural e validação dos dados.



Fonte: Elaborado pelo autor.

No tratamento das informações, os dados foram previamente filtrados e normalizados para minimizar efeitos de dimensão dos dados nos métodos de *machine learning* (ML) e a presença de *outliers* que podem atrapalhar o aprendizado. As taxas de aprendizado, números de camadas, funções de ativação, tamanho da amostra e outros ajustes serão detalhados posteriormente.

As principais etapas do trabalho foram: i) a seleção e beneficiamento (moagem e separação granulométrica) da matéria-prima, ii) caracterização de formato de partículas por microscopia óptica, iii) aferição da granulometria por difração a laser, iv) determinação experimental do empacotamento, v) treinamento da rede neural e vi) validação do modelo.

A extensão da caracterização das matérias-primas a outros dados além da distribuição granulométrica é necessária, pois, como os modelos mais recentes demonstram, o empacotamento de partículas depende fortemente de tais características (morfologia, fatores de processo etc.), conhecimento que vem aumentando progressivamente em complexidade.

4.1 Seleção de matérias-primas

Os critérios para a seleção das matérias-primas foram: composições químicas semelhantes, potencial de aplicação, por exemplo em vitrocerâmicas e geopolímeros, e diferentes estruturas atômicas, amorfa e cristalina. A mecânica de fratura de materiais amorfos difere da de materiais cristalinos, gerando partículas inerentemente distintas quando submetidas a cisalhamento durante a moagem⁶⁰. As matérias-primas utilizadas foram a areia obtidas da moagem de quartzito em duas granulometrias e de um vidro soda-cal-sílica temperado termicamente em seis granulometrias.

A areia de quartzo selecionada foi beneficiada pela empresa SA Beneficiamento Mineral, sendo o material rejeitado da produção de quartzito ornamental de São Tomé das Letras, com aproximadamente 99,6% de SiO₂; 0,3% K₂O e 0,1% Fe₂O₃. O baixo aproveitamento dos rejeitos, aproximadamente 10% do material extraído⁶¹, justifica as buscas para seu uso.

A matéria-prima amorfa utilizada foi o vidro soda-cal-sílica temperado. O vidro foi inicialmente limpo para eliminar contaminações através de lavagem com água em 3

etapas, onde os precipitados contaminantes são separados e o vidro seco a 110 °C durante 4 h.

As matérias primas utilizadas estão em inúmeras publicações, tanto para areia^{11,13,14,18,19,20,31,37,38,62,63,64,65,66} quanto para vidro^{11,15,18,24,28,62,67,68,69,70}, e são utilizadas vastamente como modelos ou matérias-primas na área de empacotamento, sendo umas das principais ênfases a área de concreto.

4.2 Moagem do vidro

A moagem foi realizada utilizando um moinho de discos de zircônia rotativo Fristch 13, onde controla-se o espaçamento médio entre os discos, cisalhando as partículas neste espaço com o intuito de diminuir restringindo o tamanho máximo de partícula.

A nomenclatura da matéria-prima neste trabalho indica o espaçamento entre discos de moagem utilizado para sua produção, muito próximo de sua granulometria média.

O método de moagem influencia diretamente o formato das partículas e consequentemente seu empacotamento. Autores na área de empacotamento diferenciam o formato das partículas desde arredondadas a irregulares, portanto o método de cominuição deve ser considerado quando a dispersão de tamanhos de partículas na mistura é larga e a razão entre os diâmetros misturados é pequena.

4.3 Picnometria

A aferição da densidade das matérias-primas foi realizada pela determinação precisa da massa de amostras das mesmas em balança de precisão e de seu volume com auxílio de um picnômetro Ultrapycnometer 1000, com gás hélio a 20 psi e realizando a medição por pulso, com 24 repetições para cada matéria-prima. A Eq. (19) mostra o cálculo do volume da amostra, V_{am} , realizado a partir das características do picnômetro e medidas de pressão realizadas no mesmo.

$$V_{am} = V_c + \frac{V_a}{1 - \frac{P_2 - P_a}{P_3 - P_a}} \quad (19)$$

- V_c = volume da célula
- V_a = volume do gás adicionado
- P_2 = pressão inicial de medição
- P_3 = pressão final de medição

A pressão atmosférica, P_a , pode ser desconsiderada conforme a Eq.(20).

$$V_{am} = V_c + \frac{V_a}{1 - \frac{P_2}{P_3}} \quad (20)$$

As matérias-primas de granulometrias mais grossas apresentaram menor desvio-padrão das medidas e foram utilizadas na determinação da densidade. Foram aferidas as densidades da areia de granulometria 600 μm e do vidro de 800 μm .

4.4 Separação granulométrica por peneira

Em busca de completar o aprendizado de máquina com grãos grossos e pouco polidispersos, foi realizada a separação granulométrica em peneira de 850 μm após a moagem de vidro temperado com distância entre discos de 1 mm (diâmetro), selecionando-se a matéria-prima retida.

O uso de granulometrias peneiradas tem o intuito de treinar o modelo para prever o comportamento de distribuições diversas, explorando os casos menos ideais de empacotamento (granulometria grossa e distribuição estreita). Os fatores de forma neste caso são mais precisos devido ao maior número de pixels por partícula na análise de imagens.

4.5 Granulometria

A aferição da granulometria foi realizada em um granulômetro Frisch Analysette 22 NanoTec Frisch em meio úmido por difração à laser, consultando-se a norma ISO 13320-1 e os índices de refração dos materiais e do meio. O método escolhido foi o elaborado por Gustav Mie⁷¹ devido à maior precisão para granulometrias mais finas e seus índices de refração atenderem o requisito da aplicação, a saber, razão entre os índices de refração da partícula e do meio menor ou igual 1,1.

As medidas foram repetidas 9 vezes, e foram consideradas a distribuição de tamanhos de partículas e a média aritmética das medidas. A medida de partículas mais grossas foi descartada devido à elevada sedimentação no equipamento durante o processo.

4.6 Microscopia óptica

As matérias-primas de granulometria igual ou menor que 150 μm de média aritmética foram submetidas a um processo de separação por dispersante em meio aquoso, enquanto as de granulometrias maiores foram espalhadas em uma placa de vidro diretamente e analisadas.

O processo de preparação de amostras para microscopia óptica e análise de imagens de partículas menores foi realizado de acordo com os seguintes passos:

- Mistura de 1 g de amostra em 9 mL de água destilada em um béquer de 10 mL;
- Agitação mecânica centrípeta com bastão de vidro durante 5 min;
- Adição de 0,5 mL de dispersante polimetacrilato de amônia utilizando uma pipeta;
- Agitação mecânica nas mesmas condições anteriores;
- Pipetagem de gotas sobre uma placa de vidro e
- Secagem durante 4 h em 130 °C.

Durante a secagem não houve nenhuma aglomeração significativa de material fino ou grosso na placa, sendo ambos completamente dispersos na imagem para análise. Na análise das imagens obtidas por microscopia óptica, foram considerados majoritariamente os grãos mais grossos ($> 50 \mu\text{m}$) devido à maior precisão, limitada pela resolução do equipamento, e maior influência no empacotamento⁴¹. Os fatores de forma utilizados foram a razão de aspecto, a solidez (área de partícula em razão de sua área convexa), a esfericidade e a dimensão fractal (rugosidade⁷²). Para tanto, foram selecionadas mais de 1000 partículas de cada matéria-prima, permitindo-se determinar a distribuição dos resultados em torno de um valor médio e seus desvios-padrões. Todos os fatores de forma envolvidos foram encontrados através do *software* ImageJ.

As variáveis de forma foram calculadas através das Eqs. (21) a (23)⁷³ e utilizadas para a otimização dos métodos de *machine learning*.

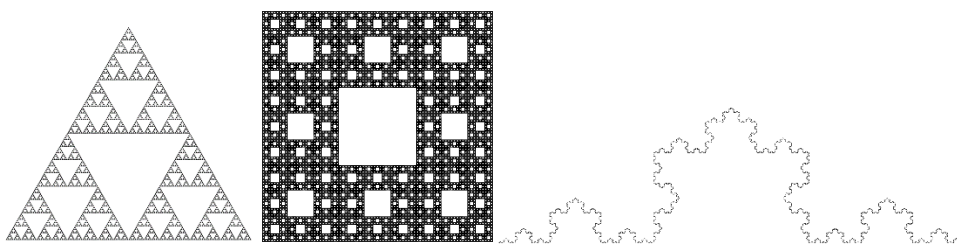
$$\text{Razão de aspecto} = \frac{\pi \text{ Maior eixo}^2}{4 \text{ Área}} \quad (21)$$

$$\text{Solidez} = \frac{\text{Área}}{\text{Área convexa}} \quad (22)$$

$$\text{Esfericidade} = \frac{4\pi \text{ Área}}{\text{Perímetro}^2} \quad (23)$$

A determinação da dimensão fractal foi previamente testada a partir de imagens com dimensões fractais conhecidos (Figura 6). As imagens são repetições das dimensões prévias gerando as figuras, a saber, o triângulo de Sierpinski, carpete de Sierpinski e a curva de Koch

Figura 6 - Curvas utilizadas para a calibração da mensuração fractal, da esquerda pra direita: Sierpinski, carpete de Sierpinski e a curva de Koch.



Fonte: Elaborado pelo autor.

O método consiste na aplicação da dimensão de Minkowski-Bouligand, comumente chamada de *box-counting* que consiste em limitar uma certa área em um quadrado ou conjunto de quadrados em 2 dimensões e determinar a dimensão fractal conforme a Eq. (24).

$$D = \dim_{caixa} = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{\log N(\varepsilon)}{\log\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)} \quad (24)$$

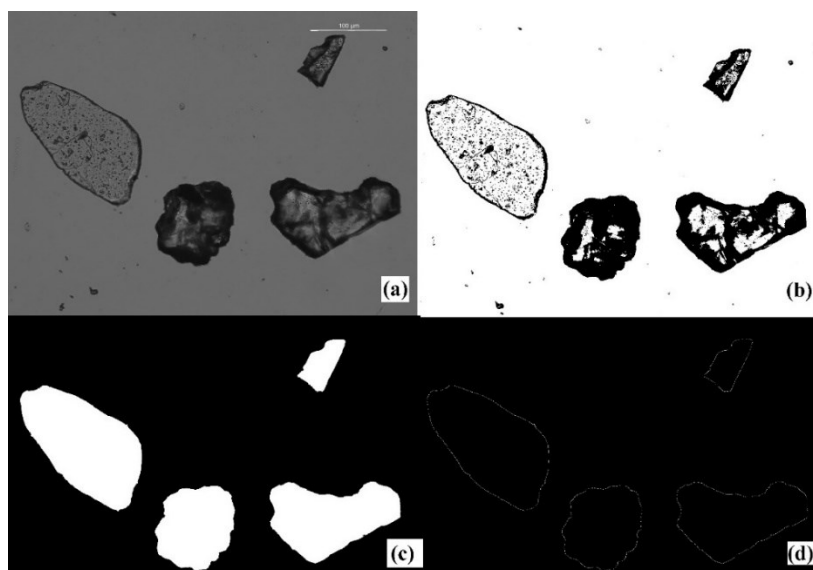
Onde:

- D = dimensão fractal
- N = número de caixas
- ε = tamanho da caixa

A dimensão fractal medida na escala de pixel será utilizada como medida da rugosidade das partículas, portanto, exige a obtenção de imagens com elevada resolução e a exclusão de partículas muito pequenas.

Na escala micrométrica, o microscópio utilizado foi o Leica DM4 P. As partículas foram previamente separadas através do software ImageJ, tendo-se excluídas as partículas aglomeradas, intercaladas e de tamanho pouco significativo. A Figura 7 demonstra a execução dos filtros de imagem onde foram realizados (a) o carregamento da imagem original, (b) a aplicação do filtro binário, (c) a inversão de cores, exclusão manual de partículas não observáveis e o preenchimento dos vazios para análise de fatores de forma e (d) o realce do contorno para a análise fractal. Os fractais escolhidos como determinantes são a média da distribuição, na regressão os tamanhos de caixa ε são 2,3,4,6,8,12,16 e 32 pixels.

Figura 7 - Tratamento de imagem, na seguinte ordem: (a) carregamento da imagem original, (b) transformação em imagem binária, (c) inversão de imagem, preenchimento dos vazios, retirada de ruído (outliers) e (d) determinação do contorno da partícula.



Fonte: Elaborado pelo autor.

A exclusão de partículas menores limita a análise para partículas de granulometria fina encontradas na imagem, no entanto, promove uma maior precisão pela consideração de partículas com maior número de pixels, não altera significativamente a consideração volumétrica de amostra e a influência do formato de finos no empacotamento foi baixa.

É importante observar que a razão de aspecto visualizada neste caso é a maior, dada a maior probabilidade do alinhamento das partículas ao longo de sua maior razão de aspecto sobre o plano do substrato em que são dispostas, pela ação da gravidade.

Os dados foram extraídos do computador em formato CSV e posteriormente inseridos na rede neural, com as respectivas distribuições para cada classe granulométrica de amostra. A análise geral dos fatores de forma das partículas facilita a determinação dos resultados pela rede neural, excluindo possíveis redundâncias/análises e de máximos locais durante o processo de treinamento.

4.7 Empacotamento

A metodologia para o ensaio de compactação sob vibração realizada neste trabalho foi adaptada de De Larrard (1999)²⁰. O ensaio foi realizado através da vibração de uma certa massa de pó de uma dada granulometria sob compressão de 10 kPa durante quatro min. As granulometrias médias das amostras testadas foram 2400 a 3 μm , diferentes das do trabalho de De Larrard, de 10.000 a 80 μm .

A escolha da metodologia foi devida ao uso extensivo do método de compressão uniaxial com vibração na conformação de materiais cerâmicos. A metodologia original do autor foi uma adaptação da norma francesa P 18-577 (anulada), realizada em uma modificação da máquina de Deval²⁰. A compressão de materiais cerâmicos em pó é afetada por diversos fatores. A Tabela 2 compara a metodologia original utilizada por De Larrard em 1999 e a adaptada neste trabalho.

Tabela 2. Comparação entre a metodologia original utilizada por De Larrard em 1999 e a adaptada deste trabalho.

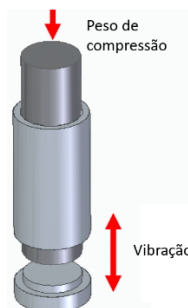
Metodologia	De Larrard (1999)	Adaptado
Massa de amostra (g)	7000	50-4
Material particulado	Areia (quartzo)	Areia (quartzo) e vidro soda-cal-sílica
Granulometria (μm)	10.000 – 80	2.400 – 3
Tempo de vibração (s)	120 + 40 + 60	240
Amplitude de vibração (mm)	4 + 0,2 + 0,08	0,41
Esforço de compressão (kPa)	10	10
Dimensões máximas de compressão (mm)	Ø160 x 320	Ø35 x 50

Fonte: Elaborado pelo autor.

Para realizar a compressão e aferir o empacotamento utilizou-se um pistão cilíndrico em uma câmara também cilíndrica de base removível para a extração do pó, com massa determinada para aplicação de 10 kPa pelo próprio peso e ajuste estreito à

câmara interna para evitar a saída de finos. A Figura 8 ilustra o funcionamento da matriz de compressão com a respetiva direção do vetor de força.

Figura 8 - Vetores de esforços durante os esforços de compressão e vibração.



Posteriormente, o empacotamento ϕ é calculado pela razão entre o volume referente à massa da amostra e o volume final da câmara ocupada pelo material comprimido, de forma que corresponda à densidade relativa do material compactado, isto é, à fração do volume da câmara ocupada pelo material, de acordo com a Eq. (25), sendo a massa seca M_s aferida entre 80 e 4 g, a altura h entre 5,35 e 0,028 cm e o diâmetro \emptyset fixo em 35 mm. O volume é assim determinado pela área da base, conhecida a partir das dimensões e geometria da matriz de compactação, e a altura h após compactação, determinada com o uso de um paquímetro.

$$\phi = \frac{4M_s}{\pi\emptyset^2 h\rho_s} \pm 0,0045, \forall \phi \in (0,1) \quad (25)$$

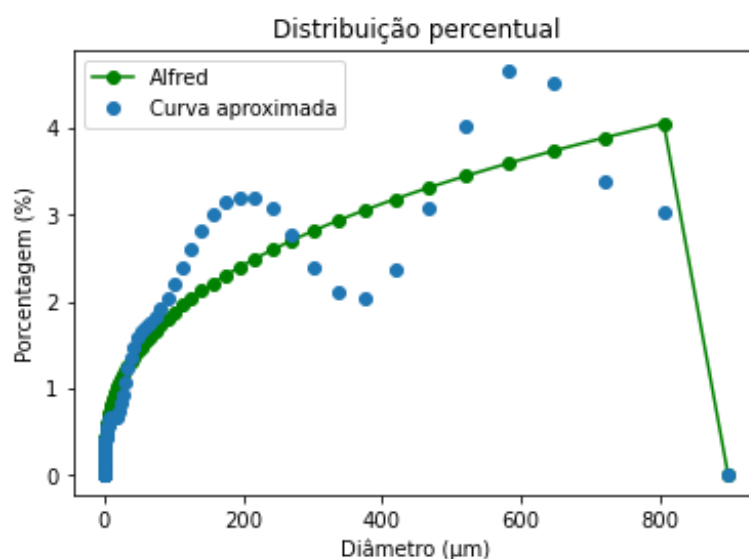
Na Eq. (25), indica-se o erro na determinação do empacotamento, estimado pela propagação dos erros das medidas associadas. A matriz de compactação não se modificou significativamente devido à têmpera realizada para mitigar desgastes, portanto, o valor da variação do diâmetro foi desconsiderado.

Os valores de empacotamento variam entre 0 e 1. Devido a sua normalização intrínseca, foram inseridos diretamente na rede neural. Para cada aferição com diferentes massas, a rede neural recebe a informação da massa da mistura granulométrica e seu respectivo empacotamento.

Para a verificação do modelo de empacotamento ótimo foi utilizada a curva de Alfred, comparando-se o empacotamento do material particulado com o das demais granulometrias isoladas. O modelo foi criado com base na combinação de vidros de granulometria polidispersa e ajuste de curva pelo método de Monte Carlo⁷⁴, conforme

Figura 9. O método de Monte Carlo consiste em restringir um domínio de teste e aplicá-lo inúmeras vezes de forma randômica, até se encontrar um valor dentro dos limites de tolerância dados. No entanto, é um método relativamente lento. As composições de matérias-primas utilizadas para atingir a curva foram 40,8, 43,0, 8,8 e 7,4% dos vidros moídos em granulometrias dadas pelo espaçamento entre discos de 700, 300, 150 e 50 μm no moinho.

Figura 9 - Curva percentual aproximada usada na aferição do modelo de Alfred. do percentual de cada granulometria.



Fonte: Elaborado pelo autor.

4.8 Rede neural

Em busca de se obter um conhecimento mínimo do método aplicado, se faz necessária uma breve introdução sobre redes neurais e como foram aplicadas neste trabalho.

As redes neurais são majoritariamente compostas por sete fatores: perceptrons (neurônios), funções de ativação, *Kernel* (método de otimização), *learning rate* (taxa de treinamento), *epochs* (iterações de *batch*), *batch size* (tamanho do teste), *layers* (camadas) e função de perda (*loss*).

Perceptron é um conceito criado por McCulloch & Pitts (1943)⁷⁵, que utilizaram uma função composta para gerar um resultado, apelidada de perceptron, também chamado de neurônio artificial. Seja $f(g(x))$ uma função resultante de uma combinação

de i fatores, em que uma função $g(x)$ insere estes fatores como uma soma ponderada pelos seus pesos w_i , conforme Eqs. (26) e (27).

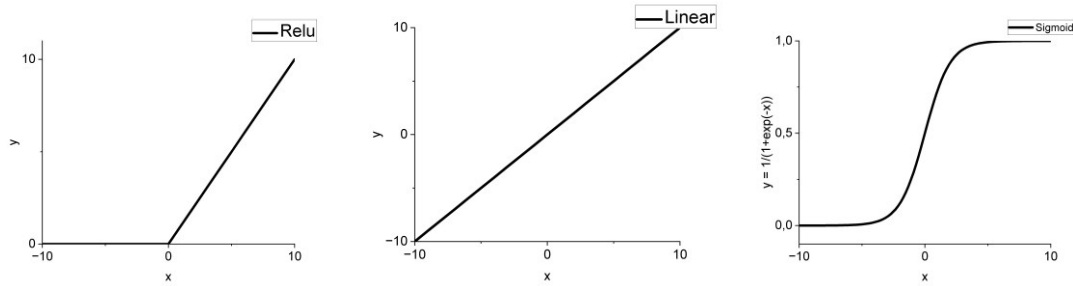
$$g(x) = \sum_{i=1}^n w_i x_i \quad (26)$$

$$f(g(x)) = f\left(\sum_{i=1}^n w_i x_i\right) = y \quad (27)$$

Portanto, a função $g(x)$ é uma soma ponderada inserida em uma função de ativação $f(g(x))$. Este conjunto é chamado de perceptron, pois recebe as variáveis e encapsula seus pesos com base em uma função de ativação, ajustando sua relevância na variável final.

Função de ativação: é uma função que interpola os fatores recebidos por $g(x)$ em camadas e gera um resultado em um certo domínio. Neste trabalho, foram utilizadas as funções de ativação *relu*, *linear* e *sigmoide*. *Relu* é uma função variável que delimita neurônios improdutivos e auxilia na descida do gradiente (otimização) limitando a saída no domínio de $relu(g(x)) = \max [0, x]$ e $relu(g(x)) \in [0, \infty)$. Cabe ressaltar que, por ser uma função simples, possui uma grande eficiência computacional, necessária para processos de alimentação contínua. Em busca da rede neural adquirir variáveis com maior escalabilidade, isto é, possuir um maior valor de importância nos pesos adquiridos, a função *linear* ($g(x) = x$, $linear(g(x)) \in (-\infty, \infty)$), é uma alternativa. Já a função *sigmoide*, que tem um comportamento mais suave em resposta às variáveis de entrada, é mais adequada para casos em que há um valor de resposta delimitado entre 0 e 1, dado que $sigmoide(g(x)) = \frac{1}{1+e^{-x}}$. Essas funções são ilustradas na Figura 10.

Figura 10 - Funções de ativação utilizadas em ordem da esquerda para direita: Relu, Linear e Sigmóide.



Layers (camadas) são definidos como subseções onde cada um dos pesos é atribuído. Cada camada possui uma função de ativação e um número de neurônios. É necessário obter critérios específicos, pois adicionar um número elevado de funções iguais pode causar problemas, como a morte de neurônios *relu* por excesso de camadas⁷⁶. O número de camadas utilizadas na otimização foi de 4, sendo a última a saída entre 0 e 1.

Kernel (núcleo): o *kernel* é uma função iterativa aplicada para realizar a descida do gradiente (encontrar o ponto ótimo). Neste trabalho, o método de iteração utilizado para otimização foi o *Adaptive Moment Estimation* (Adam), um dos melhores para dados dispersos e adequado quando há muitos parâmetros por amostra⁷⁷. A variável de ajuste x , neste caso, é atualizada na forma da Eqs. (28) a (30).

$$m = m \beta_0 + (1 - \beta_0)dx \quad (28)$$

$$v = m \beta_1 + (1 - \beta_1)dx^2 \quad (29)$$

$$x = \frac{-learning\ rate \cdot m}{\sqrt{v} + eps} \quad (30)$$

- v momento da descida do gradiente;
- β_0 e β_1 é o decaimento inicial;
- m gradiente suave de inicialização de otimização;

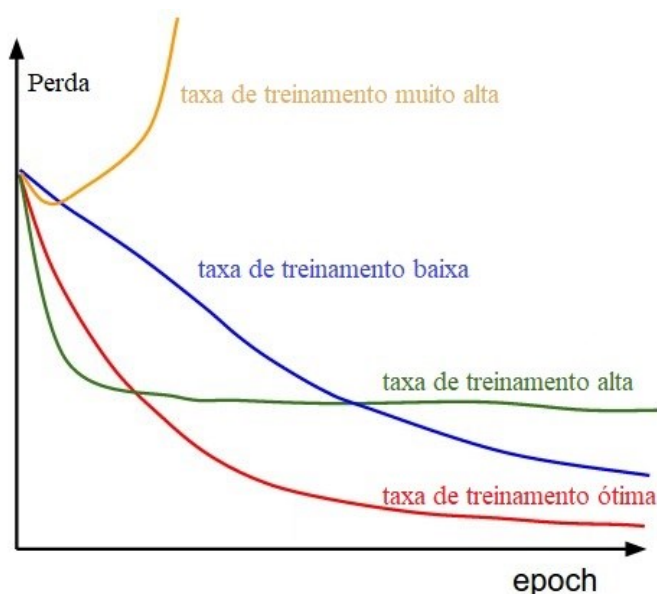
- *eps* designa a suavidade da função, impedindo a divisão por zero;
- *learning rate* é a taxa de aprendizado.

Learning rate (taxa de aprendizado) é o tamanho do passo para a otimização da rede neural, isto é, como a rede neural avança em seu treinamento, sendo uma boa métrica verificar se sua perda (erro de ajuste) por *epoch* diminui. O *learning rate* utilizado neste trabalho foi 1.10^{-3} .

Dropout (camada de eliminação) é uma das formas eficientes de prevenir o overfitting, sendo o método consiste em eliminar neurônio de forma que a rede se adapte às variáveis mais relevantes de maneira generalizada (fuga dos ótimos locais)⁷⁸. Neste caso o dropout foi testado e não utilizado no trabalho devido a baixa efetividade na diminuição do erro.

O *epoch* (treinamento por *batch*) define o número de vezes que a rede neural é treinada, podendo haver mais de uma iteração por *epoch*. Valores grandes de *epoch* podem causar um impacto significativo no tempo de treinamento da rede neural. Um correto ajuste desta variável é alcançado pela diminuição do erro associado à rede. A Figura 11 demonstra como é a evolução da *perda* por *epoch* para diferentes *taxas de treinamento*, indicando o quão ajustado está a rede neural para o modelo. A quantidade de *epochs* neste trabalho foi de 128 *epochs*.

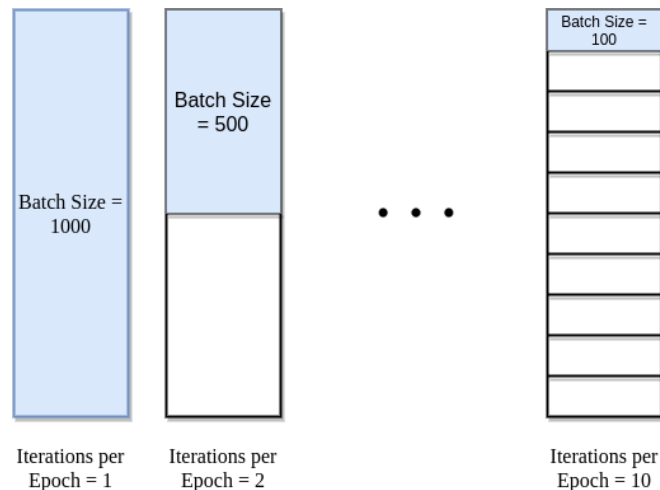
Figura 11 - Influência da taxa de treinamento e *epoch* na perda da rede neural.



Fonte: Adaptado pelo autor⁷⁹.

Batch size indica o número de amostras utilizadas no treinamento da rede neural. Em cada *epoch* são testadas um grande número de amostras. Há uma correlação intrínseca direta entre número de amostras e taxas de aprendizado⁸⁰. A Figura 12 demonstra o funcionamento da dinâmica entre *batch size* e *epoch*, onde foi inserido um conjunto de amostras totalizando 1000 dados na rede, separados em *batch sizes* de 1000, 500 e 100. Neste trabalho, o *batch size* foi de 256.

Figura 12. Tamanho do batch size e sua quantidade de iterações por epoch.



Fonte: Adaptado pelo autor⁸¹.

Perda (*loss*): a função de perda (*loss*) tem como objetivo guiar a otimização verificando se houve progresso no treinamento. No problema de regressão, o indicador mais utilizado é o erro quadrático médio, Eq. (31).

$$\text{Erro quadrático médio} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (\bar{y} - y_i)^2 \quad (31)$$

- y_i valor da amostra;
- \bar{y} valor da média aritmética amostral.

Para a regressão no caso da densidade de empacotamento deste trabalho, foram utilizados modelos de redes neurais baseados em API Keras (código-fonte da rede neural), utilizando a plataforma de aprendizado de máquina Tensorflow.

Em suma os modelos de redes neurais baseados em *deep learning* auxiliam na otimização de problemas de classificação, otimização e tomada de decisão.

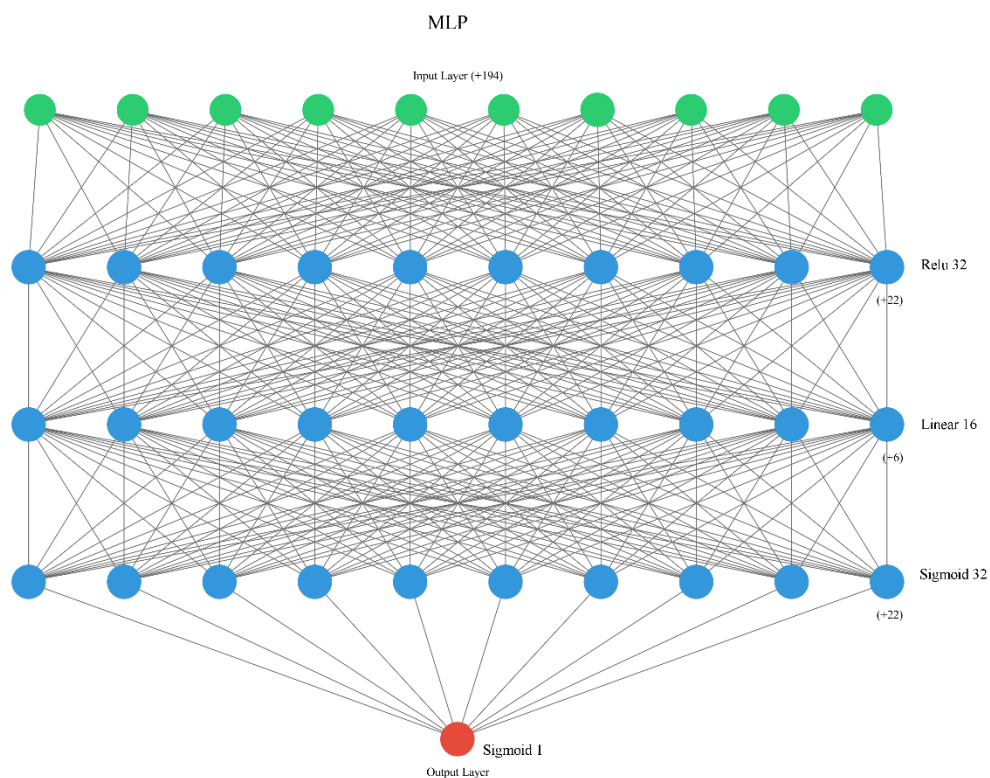
Neste trabalho pretende-se utilizar a plataforma de *machine learning* que trabalha com um *framework* de manipulação de N-dimensões (tensores). Os tensores são estruturas N-dimensionais que computam as variáveis em funções de ativação, atribuindo pesos e importância em cada variável/neurônio. As camadas ou *layers* são conjuntos de neurônios, normalmente com uma função de ativação, que encapsulam os pesos e realizam a convolução das funções de ativação em cada neurônio, atribuindo os respectivos pesos às variáveis inseridas, resultando em uma ou mais variáveis resposta.

Os modelos foram selecionados com base nos resultados observados e variando as variáveis utilizadas. Neste caso se variou as técnicas de *machine learning* utilizadas, com base nos resultados observados, sendo eles:

- Número de camadas
- Quantidade de neurônios
- Dropout
- Funções de ativação
- Epochs
- Batch size

A arquitetura de rede utilizada é a Multilayer Perceptron (MLP), devido a simplicidade de aplicação e a sua aplicação em encontrar correlações em aprendizado supervisionado. A estratégia foi a redução de camadas *bottleneck* para permitir uma maior generalização da rede com um número baixo de dados. Todas as variáveis de entrada foram normalizadas entre 0 e 1 para que não houvesse distorção entre os valores descritos, já para as funções na camada oculta foram utilizadas a *relu*, uma camada oculta *linear* e duas camadas de função *sigmoide* como variáveis de saída, devido à sua melhor otimização para gradiente, conforme mostrado na Figura 13. Assim, as camadas na rede neural foram iniciadas com 204 variáveis das 201 amostras, que prosseguiram como camadas ocultas em sequência “relu” (32 neurônios), linear (16 neurônios), sigmoide (32 neurônios) e uma saída “sigmoide” (1 neurônio).

Figura 13 - Camadas utilizadas na rede neural, sendo a inicialização com 204 variáveis das 201 amostras e prosseguindo com as camadas ocultas em sequência “relu” (32 neurônios), linear (16 neurônios), sigmoide (32 neurônios) e uma saída “sigmoide” (1 neurônio).



Fonte: Elaborado pelo autor.

A granulometria foi adicionada na escala micrométrica, sendo necessária uma alteração para a escala nanométrica para trabalhos posteriores, caso contrário haveria correlações errôneas como presença única de aglomeração para determinadas matérias-primas, entre outros efeitos indesejados de superfície.

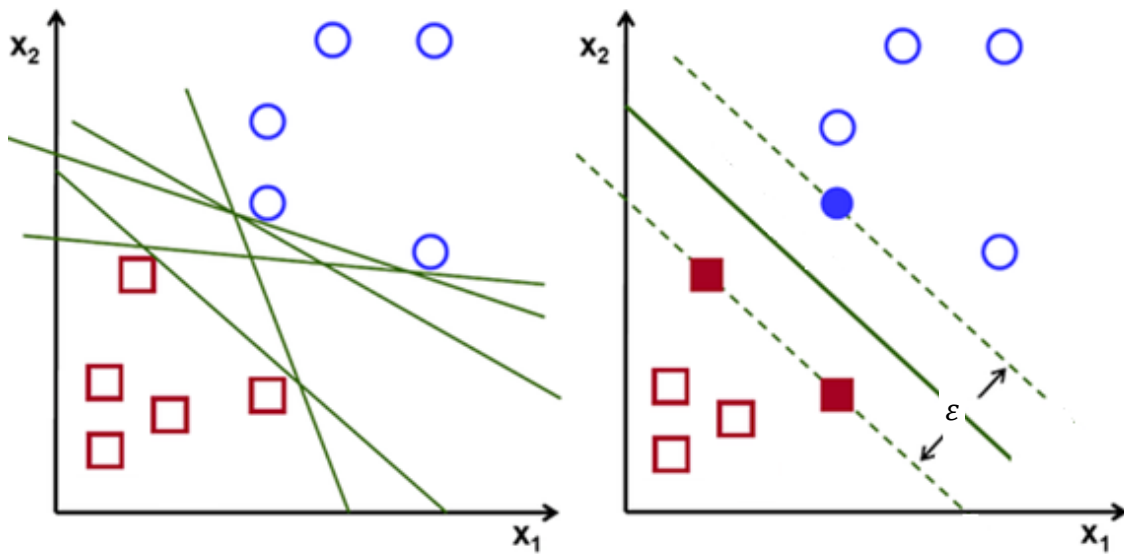
4.9 Support Vector Machine

O método *Support Vector Machine* (SVM), que pode ser utilizado tanto para regressão como para classificação, é de grande utilidade na área de *machine learning*⁸², principalmente na área de reconhecimento de imagens e objetos^{83,84,85}. Posteriormente, foi substituído pelas redes neurais devido ao elevado número de dados disponíveis para treinamento. O método consiste em ajustar uma função composta $f(x)$ de vetores w em \mathbb{R}^d , descrito pela Eq. (32), com um intervalo de tolerância ε ⁸⁶.

$$f(x) = \langle w, x \rangle + b \quad (32)$$

Na Eq. (32), $\langle w, x \rangle$ denota o produto escalar entre os vetores do espaço x e de ajuste w , sendo este último um indicativo de planicidade do modelo⁸⁶. O modelo também pode ser estendido para casos não lineares, com inúmeras funções de perda (critério de ajuste), conforme Figura 14.

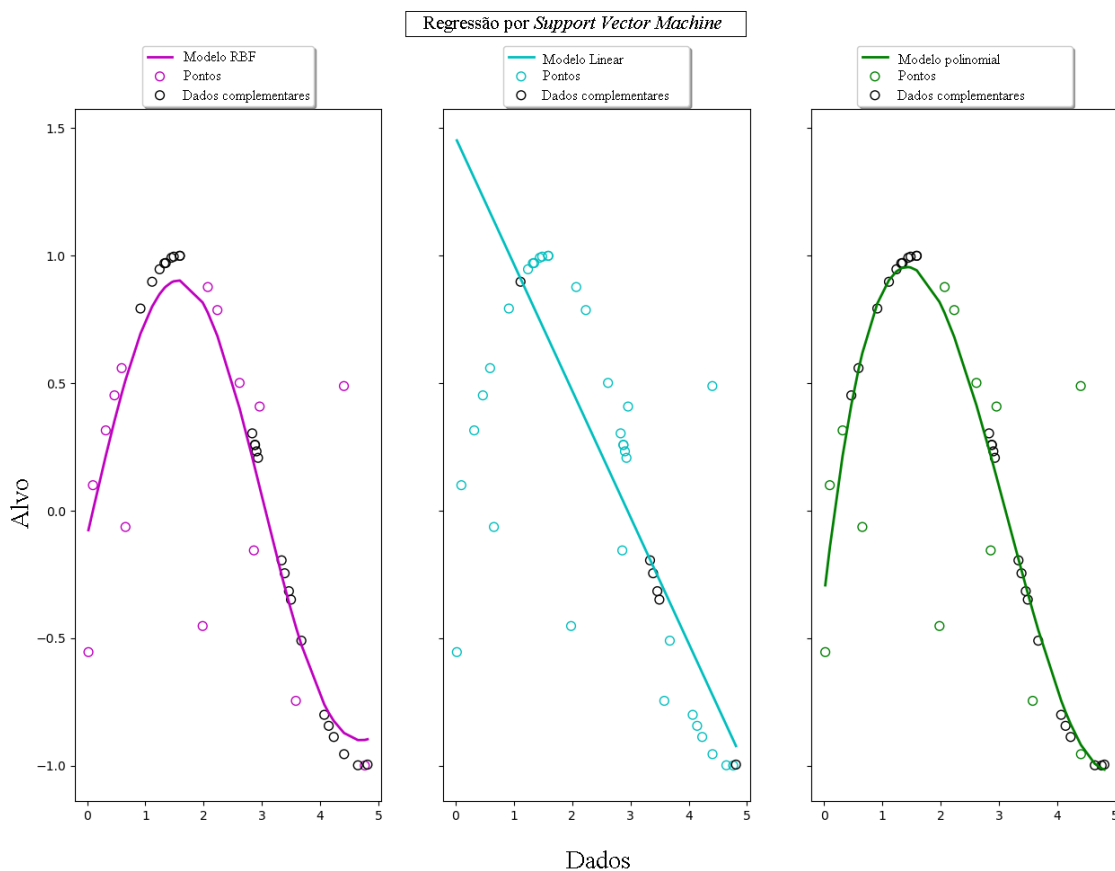
Figura 14 - Esquemas visuais do método SVM através de hiperplanos, onde o valor do erro é definido pelo ajuste entre os diferentes clusters.



Fonte: Adaptado pelo autor.

O método de *kernel* selecionado para interpolar os dados altera o resultado do ajuste. A Figura 15 exemplifica os métodos de ajuste de curva, que influencia o comportamento do ajuste e sua respectiva precisão.

Figura 15 - Ajustes de curvas e sua respectiva função de ajuste, onde o ajuste linear é limitado pelos pontos inseridos.



Fonte: Adaptado pelo autor⁸⁷.

Neste trabalho, utilizou-se a biblioteca *scikit-learn*⁸⁸, com *kernel rbf* adequado para prever a densidade de empacotamento com base nas características do material particulado.

As especificações de ajuste do método SVM são mostradas na Tabela 3..

Tabela 3. Especificações de ajuste do método SVM.

Variável de ajuste	Ajuste
Kernel	rbf
Gamma ou escala de forma	dados/número de variáveis
Termo independente	$b = 0$
Tolerância de ajuste	1.10^{-4}
Peso por classe	0
Número máximo de iterações	até atingir o critério
Tipo de separação de hiperparâmetro	amostra por característica
Decisão de seleção	valores de confiança

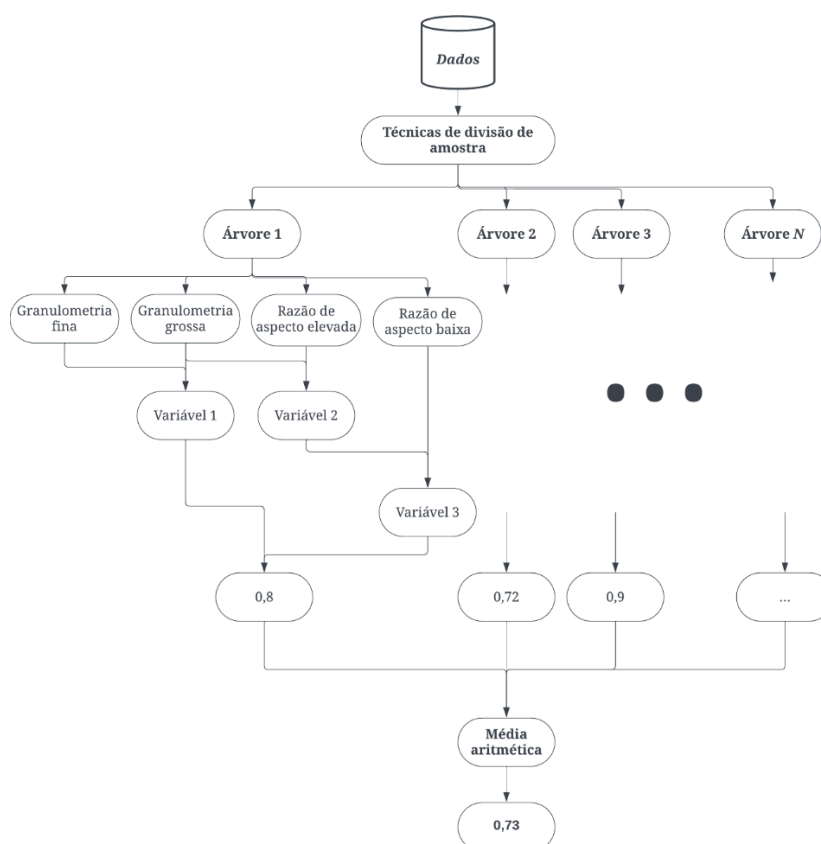
O ajuste foi realizado com base na precisão dos resultados considerando o erro médio quadrático, para fins de comparação com a rede neural e outros métodos de *machine learning*

4.10 Random Forest Tree

Random forest tree (RFT) é um método de árvore de decisão que se baseia nos valores das variáveis para classificar os resultados^{89,90,91}. O método é muito utilizado em geral para seleção estatística de variáveis, uma vez que se baseia em árvores de decisão que podem facilmente ser aproveitadas para classificação e regressão.

O método para classificação pode ser exemplificado no seguinte problema hipotético: é necessário classificar a matéria-prima com base em suas características mensuradas. As variáveis que podem explicar tal comportamento são inseridas no banco de dados e a árvore de decisão é criada, conforme ilustrado na Figura 16.

Figura 16 - Exemplo hipotético de árvore de decisão, onde são inseridas as variáveis de granulometria e razão de aspecto.



Fonte: Adaptado pelo autor.

O método adaptado para regressão leva em conta inúmeras árvores de decisão para a seleção do valor previsto, onde para cada valor de amostra n e dados de predição m a árvore se adapta para obter o valor desejado com base nas previsões calculadas, sendo, portanto, um método iterativo de médias de previsão para cada amostra⁸⁹

O método foi utilizado através da biblioteca *scikit-learning*⁸⁸, ajustada para a maior precisão do resultado, com os fatores de ajuste elencados na Tabela 4.

Tabela 4. Valores de ajuste definidos no método regressor RFT.

Variável de ajuste	Ajuste
Número de camadas	5
Número de árvores	100
Mínimo de amostras para dividir	2
Mínimo de amostra por folha	1
Critério de função de qualidade	erro quadrático médio
Número de recursos para a melhor divisão	1
Requisitos mínimo para divisão em folha	0

As características do modelo para encontrar o valor previsto, listadas acima, foram determinadas com base nos resultados previstos e o erro médio quadrático.

5 Resultados e Discussão

O número de variáveis necessárias para a construção de um modelo de densidade de empacotamento, bem como para a análise do processo, foi progressivamente inserido visando aumentar a capacidade de previsão do modelo. A influência das etapas de moagem, características morfológicas das partículas e do processo de empacotamento serão detalhadas a seguir.

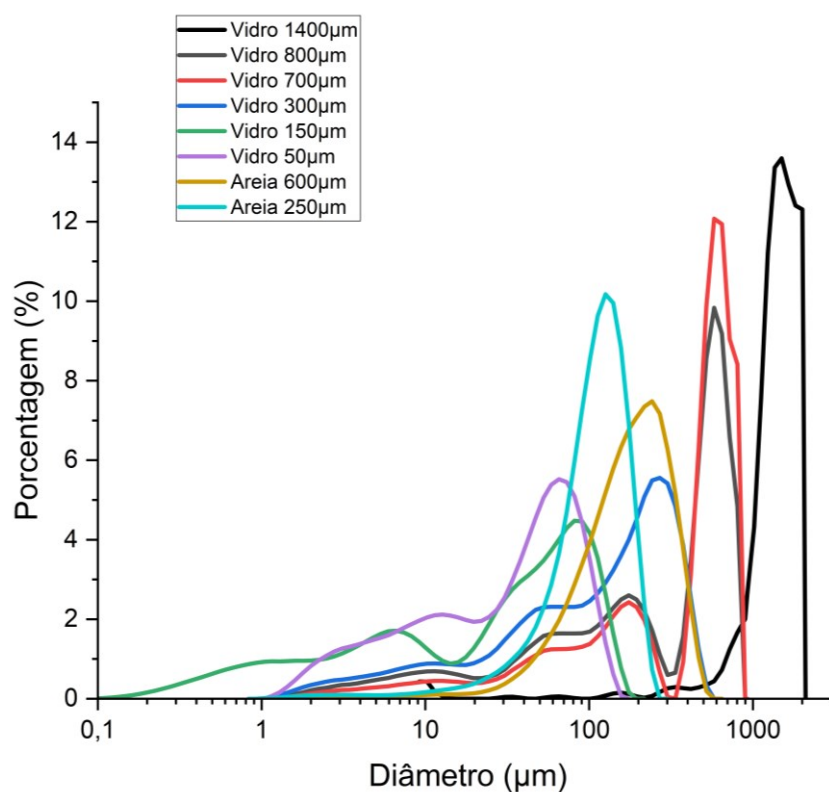
5.1 Granulometria por difração à laser

As aferições de granulometria são mostradas na Figura 17, revelando as características resultantes da moagem do vidro e da areia. A média geométrica tende a coincidir com o espaçamento entre os discos do moinho durante o processo de moagem do vidro. No entanto, há uma ressalva para classes de diâmetros próximas, vide as amostras de 700 e 800 μm na Figura 17, que podem apresentar distribuições similares devido à baixa resolução do equipamento nessa escala. As distribuições foram inseridas por completo no modelo para minimizar aproximações de distribuições e erros associados a generalização do processo, restando somente a nomenclatura para fins de identificação de amostra.

O processo de moagem depende de fatores intrínsecos e extrínsecos do equipamento, sendo, portanto, recomendada a caracterização granulométrica por difração à laser para a aferição correta dos valores e ajuste do modelo de maneira extensiva.

Um fator limitante deste tipo de caracterização é a determinação aproximada do tamanho das partículas com base em um diâmetro esférico equivalente ao efeito observado da granulometria real, e o formato irregular das partículas pode influenciar a medida por difração, que depende de seu alinhamento com o feixe de laser. No entanto, as medidas fornecem uma caracterização média do tamanho das partículas em faixas distintas.

Figura 17 - Granulometrias aferidas por difração à laser utilizando a técnica de Mie.



Fonte: Elaborado pelo autor.

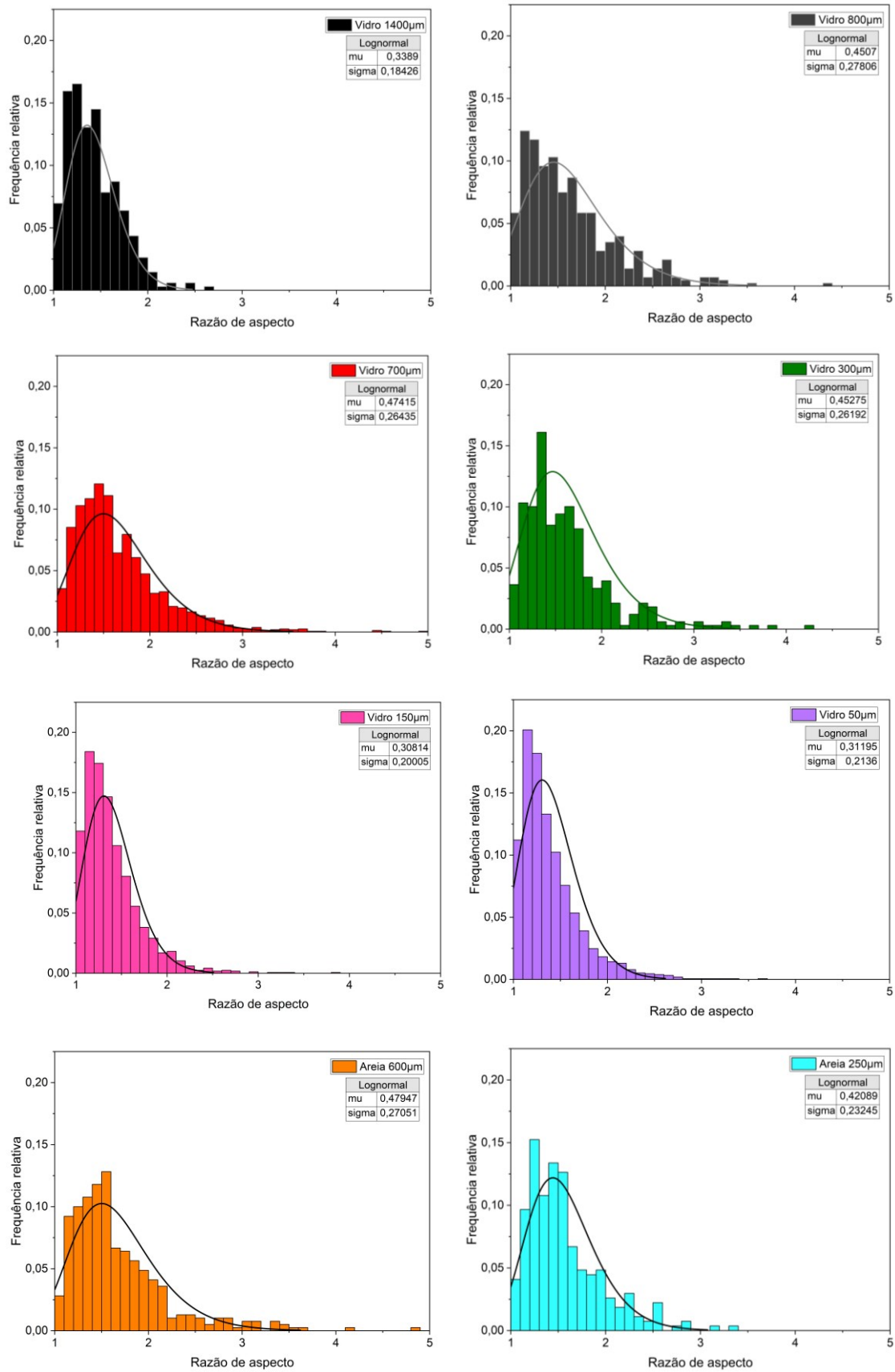
5.2 Razão de aspecto por microscopia óptica

As distribuições de razões de aspecto verificadas são mostradas na Figura 18 para cada matéria-prima.

Observa-se na Figura 18 que a razão de aspecto média diminui e aproxima-se de 1, assim como a distribuição fica mais estreita, conforme a intensidade de moagem aumenta pela redução do espaçamento entre os discos do moinho, dada a maior probabilidade de ruptura próxima ao centro das partículas maiores.

A razão de aspecto tanto das partículas da areia quanto de vidro varia significativamente com o processo de moagem e deve ser, portanto, considerada nos valores de empacotamento. Os valores de razão de aspecto, considerando as distribuições, foram inseridos na rede neural para correlacionar a forma das partículas ao valor total do empacotamento.

Figura 18 - Razão de aspecto das granulometrias analisadas.



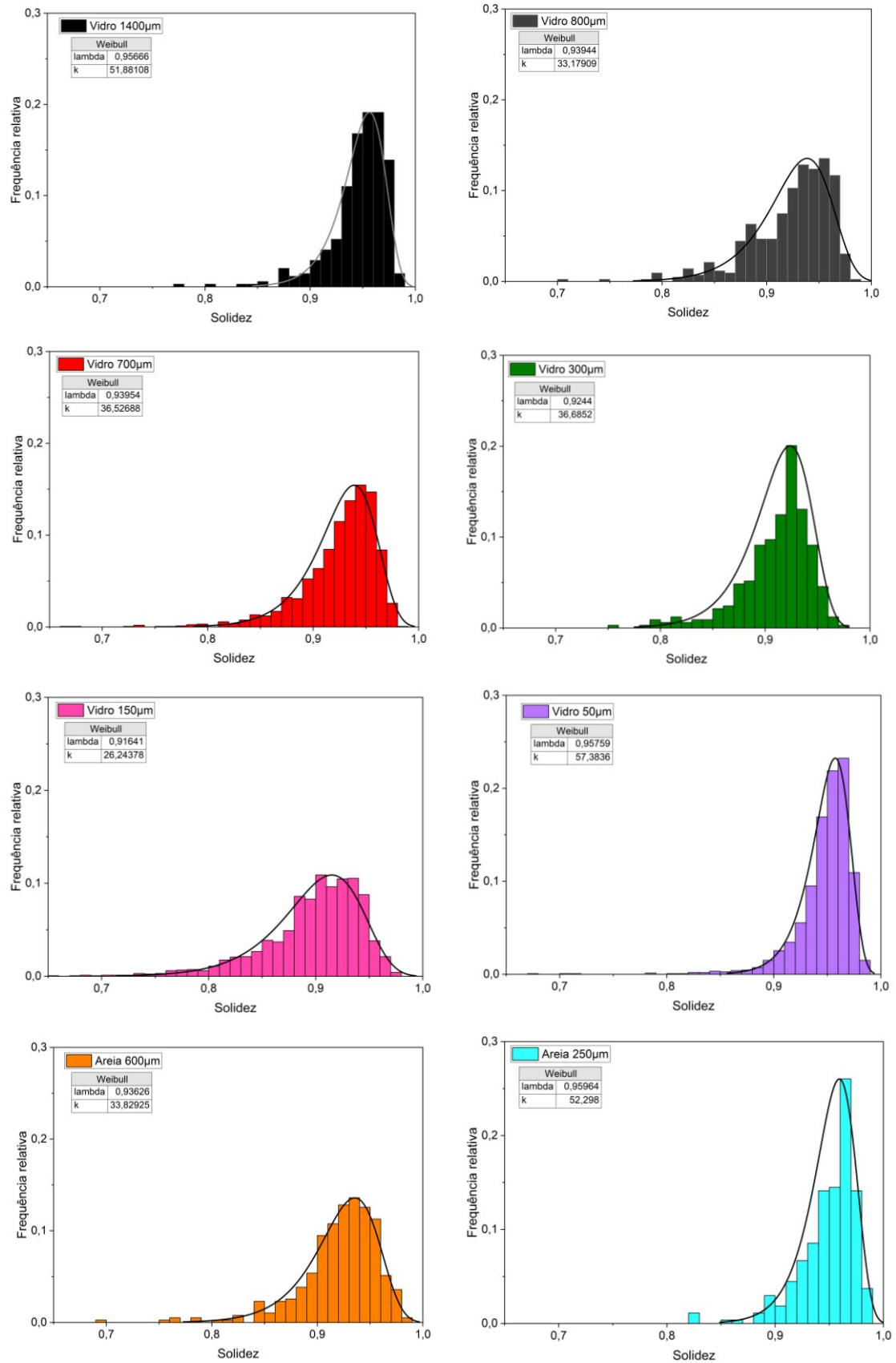
Fonte: Elaborado pelo autor.

5.3 Solidez por microscopia óptica

A solidez, dada pela razão entre a área ocupada e a área convexa externa da projeção da partícula no plano da imagem obtida por microscopia, é um indicativo de sua compactidade. Conforme as medidas apresentadas na Figura 19 para as matérias-primas utilizadas, a solidez das partículas apresenta um aumento e estreitamento com a diminuição da granulometria.

A solidez possui um comportamento próximo ao da razão de aspecto, se aproximando de 1, deslocando a distribuição para a direita, conforme a granulometria diminui, devido às fraturas sucessivas das partículas na moagem.

Figura 19 - Solidez das granulometrias analisadas.

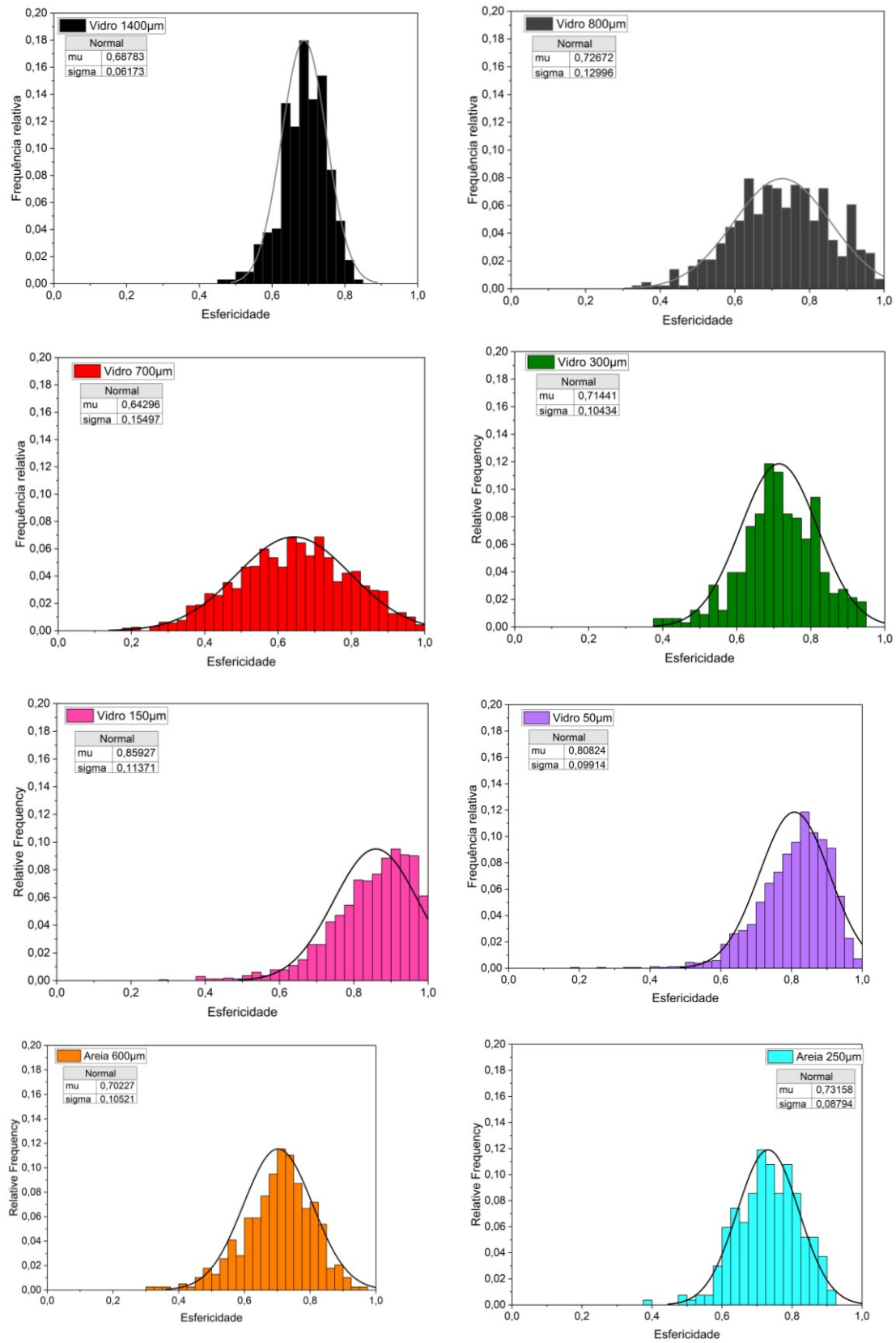


Fonte: Elaborado pelo autor.

5.4 Esfericidade

A esfericidade, definida como a razão entre a área da projeção da partícula no plano e a do círculo no qual ela é inscrita, é mostrada na Figura 20 para as amostras deste estudo. Quanto mais próximo de 1, mais circular é a projeção e mais esférica espera-se que as partículas sejam. Observa-se claramente o aumento do padrão esférico conforme a diminuição da granulometria das amostras.

Figura 20 - Esfericidade das granulometrias analisadas.



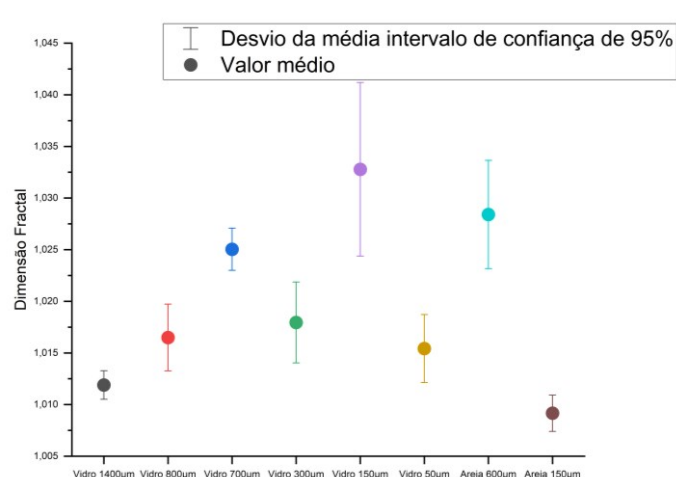
Fonte: Elaborado pelo autor.

A maior precisão na determinação da área por microscopia encontra-se para as partículas grossas, devido à resolução do microscópio e a contagem de pixel por partícula mais elevada. Nota-se o aumento da esfericidade com a diminuição da granulometria das partículas amorfas, no entanto, para a areia este efeito não é observado. A geologia das rochas quartzíticas e sua natureza cristalina pode ter influência sobre a cisão do material particulado durante o processo de cominuição.

5.5 Dimensão fractal

A dimensão fractal deve ser considerada como a rugosidade média do conjunto, onde cada uma das partículas contribui para o resultado, influenciando de forma significativa o processamento durante o empacotamento. Os resultados da determinação da dimensão fractal das amostras são mostrados na Figura 21.

Figura 21 - Valores de dimensão fractal para as matérias-primas testadas.



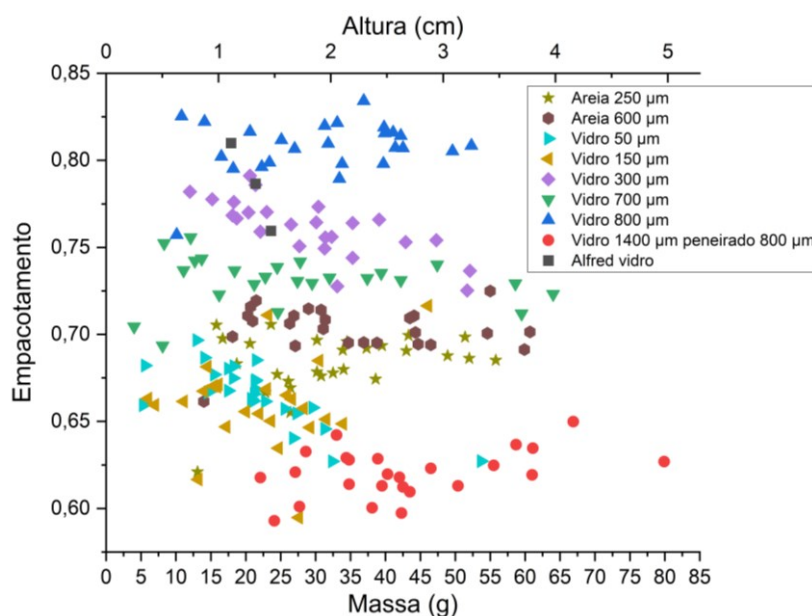
Fonte: Elaborado pelo autor.

A medida de dimensão fractal é influenciada diretamente pelo tamanho da partícula, que por sua vez afeta a resolução da imagem, sendo necessário um tratamento adequado para que não haja distorções na medida. As dimensões fractais na areia e na matéria-prima vítrea são similares, variando muito pouco entre aproximadamente 1,010 e 1,035. Portanto, conclui-se que a dimensão fractal das partículas não é alterada de maneira significativa pela cristalinidade da amostra no caso estudado, no entanto cabe ressaltar a diferença abrupta entre as partículas de vidro e areia de 150 µm, onde a moagem resultou em níveis maiores de dimensão fractal para o vidro nesta faixa.

5.6 Empacotamento

O empacotamento das amostras particuladas foi medido experimentalmente por compactação em pistão e os resultados são mostrados na Figura 22. Os empacotamentos apresentaram comportamentos distintos nas diferentes granulometrias trabalhadas. Observa-se um decréscimo no empacotamento com o aumento da massa da amostra, conforme mostrado na Figura 22, indicando aumento de gradiente de compactação conforme a altura da amostra aumenta, como é esperado pelo aumento do contato das partículas com a parede da matriz.

Figura 22 - Correlação do empacotamento com a massa de amostra, devido ao menor nível de trabalho executado por coluna. O diâmetro da matriz é constante e igual a 35 mm.



Fonte: Elaborado pelo autor.

Nota-se que o empacotamento é menos sensível à mudança de massa para granulometrias mais grossas, devido à baixa proporção de partículas por amostra. O gradiente de compactação pode ser minimizado por métodos de compressão em mais direções, ou seja, uma compressão isostática geraria uma maior efetividade de empacotamento por volume do particulado. Outras soluções seriam o aumento do peso do pistão durante a compressão para um trabalho mais efetivo de compactação e a adição de agentes lubrificantes.

O baixo empacotamento se repetiu em amostras de granulometrias mais finas e mais grossas, por exemplo, para a areia, no entanto a sensibilidade ao aumento da massa/altura da coluna é mais pronunciada em baixas de granulometrias finas. As massas

das amostras no pistão de empacotamento foram inseridas no treino dos métodos de aprendizado de máquina, dado que há uma clara influência dessa variável no empacotamento.

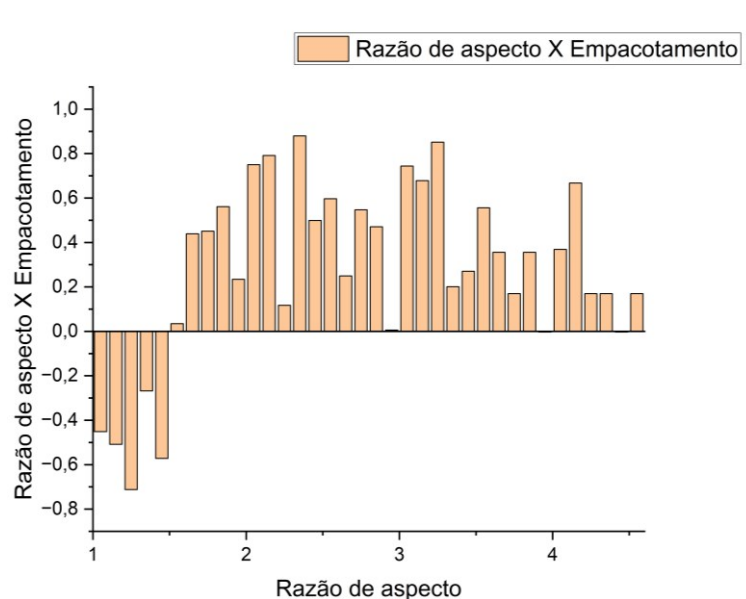
5.7 Variáveis de interesse

As variáveis que afetam o empacotamento são discutidas a seguir a partir do método da matriz de correlação, introduzido por Tukey⁹². Essa ferramenta permite encontrar correlações parcial ou totalmente diretas, assim como inversas, relacionadas a valores de 1 a -1, respectivamente⁹³.

A variável massa possui um efeito negativo no empacotamento, uma vez que quanto maior a camada pressionada, menor o trabalho transmitido sobre ela, gerando uma correlação de- 0,07338 entre as variáveis.

A hipótese de que a razão de aspecto possui uma correlação negativa com o empacotamento, sem máximos locais, não pode ser aceita. A Figura 23 mostra a correlação da razão de aspecto e o empacotamento, cujo sinal se altera na razão de aspecto igual a 1,5, em conformidade com o ponto de ótimo de esferocilindros e elipsoides⁴⁸ reportado na literatura^{46,47,48}.

Figura 23 - Região de ótimo de correlação a partir de 1,5 de razão de aspecto.



Fonte: Elaborado pelo autor.

A caracterização das partículas polidispersas, apesar de não produzir um resultado isolado como as simulações monodispersas, permite aferir com precisão o comportamento conjunto do empacotamento. Enquanto simulações de empacotamento de partículas monodispersas só preveem um ótimo, as de granulometrias polidispersas permitem detectar uma faixa ampla de máximo empacotamento. O gráfico da Figura 23 mostra que uma razão de aspecto baixa não confere diretamente um maior empacotamento.

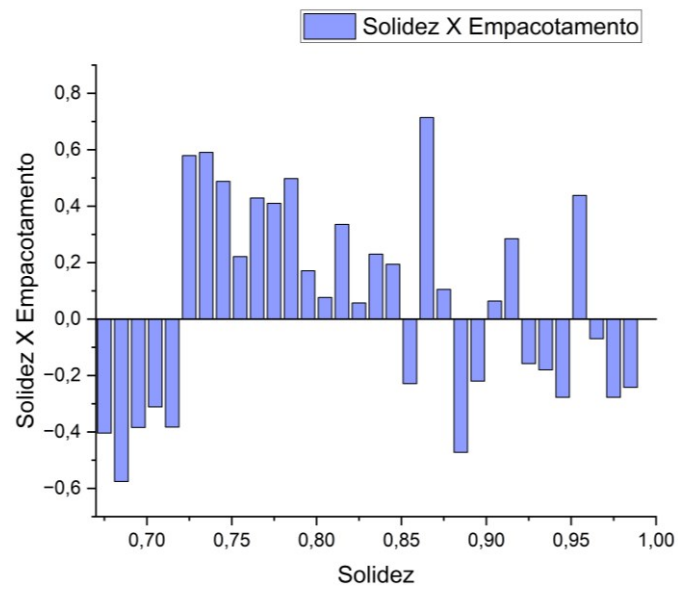
A correlação entre solidez e empacotamento é mostrada na Figura 24, em que se observa uma correlação inversa de solidez e empacotamento até a solidez de 0,725, depois a correlação se mostra positiva até aproximadamente 0,85, e apresenta uma elevada incerteza no efeito de minimização da porosidade a partir daí, conforme a Figura 24. Os valores mostram partículas com área convexa mais distante da circularidade têm maior efeito de diminuição da porosidade, o que pode ser explicado pelo encaixe de pequenas partículas nos espaços irregulares do empacotamento gerado, maximizando-o.

O resultado da correlação entre esfericidade e empacotamento é apresentado na Figura 25, mostrando concordância com as características observadas por diversos autores^{48,51,52}. A esfericidade elevada aumenta o empacotamento a partir de 0,55, no entanto, acima de 0,85 (próximo ao máximo de cilindros) a correlação tende a diminuir, embora continue positiva.

A dimensão fractal média apresentou uma correlação positiva de empacotamento de 0,048737. Apesar do valor indicar uma fraca correlação, a polidispersão (desvio padrão) da dimensão fractal apresentou um índice de correlação de 0,220526, ou seja, seu aumento corrobora significativamente com a diminuição dos vazios.

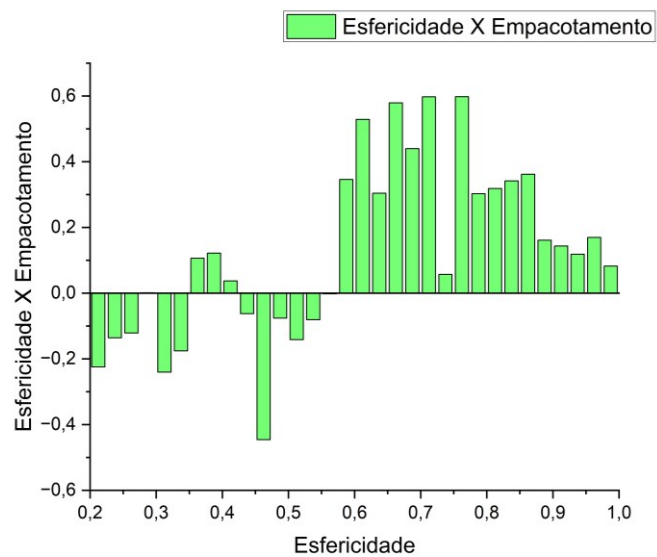
A correlação entre granulometria e empacotamento é mostrada na Figura 26, apresentando um claro aumento de empacotamento em granulometrias entre 100 a 800 μm , onde estima-se um pico entre 400 e 600 μm . Essa análise é mais complexa, pois o valor nominal da granulometria da amostra, indicativo do tamanho de partícula médio, não afeta tanto a densidade de empacotamento quanto a largura de sua distribuição granulométrica.

Figura 24 - Solidez e empacotamento, com a alteração de correlação entre 0,725 e $\sim 0,85$.



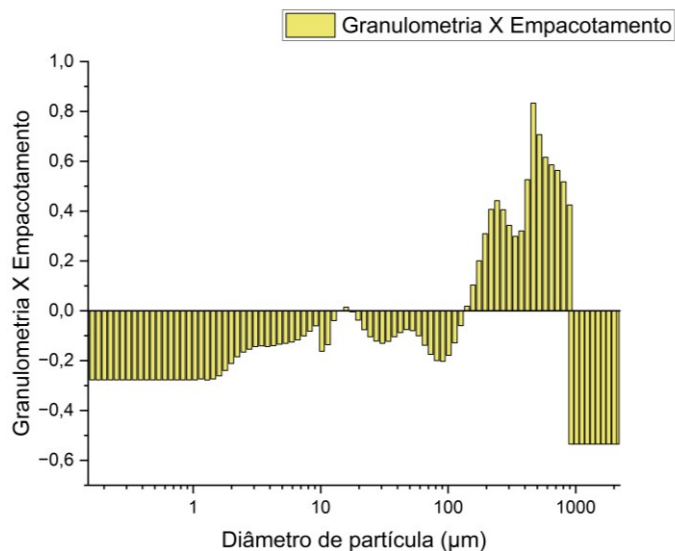
Fonte: Elaborado pelo autor.

Figura 25 - A esfericidade e empacotamento, onde há um ponto de virada em 0,55 para aumento do empacotamento no contexto polidisperso.



Fonte: Elaborado pelo autor.

Figura 26 - A granulometria e sua correlação com o empacotamento, onde há uma região granulométrica de correlação direta entre 150 e 700 μm .



Fonte: Elaborado pelo autor.

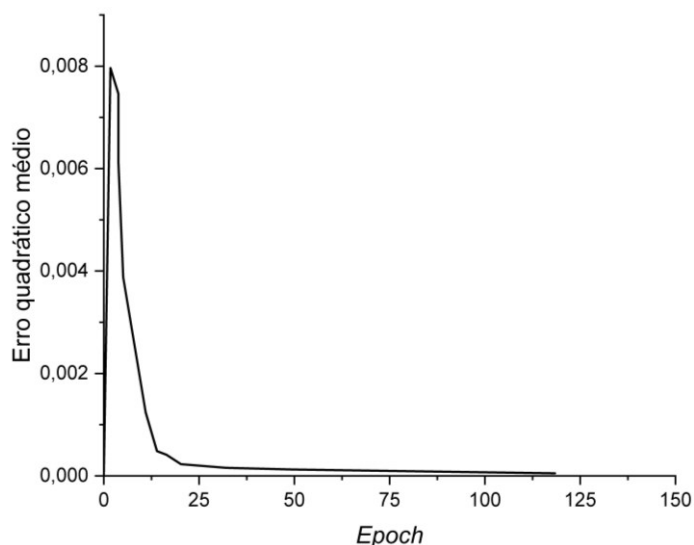
Em vista da multifatoriedade do ensaio, não é possível estabelecer a correlação entre granulometria e empacotamento de maneira assertiva. No entanto, cabe destacar que um estudo mais amplo em diferentes metodologias de ensaio é de suma importância para a análise do fenômeno de empacotamento. Neste caso há múltiplas influências na análise:

- As distribuições são majoritariamente polidispersas;
- As partículas finas aglomeram gerando partículas maiores com poros;
- Parte dos finos entram no espaço da camisa do pistão e a camisa, aumentando o atrito e diminuindo o empacotamento;
- O número de combinações das partículas grossas não tem representatividade estatística frente ao volume ocupado
- O efeito parede nas partículas grossas é relativamente maior

5.8 Empacotamento previsto pelas redes neurais e comparação com experimentos

A rede neural alcançou um ótimo ajustes nas iterações finais, conforme os dados reportados pela ferramenta TensorBoard (Figura 27), logo é possível concluir que seu treinamento foi adequado, em concordância com Figura 11.

Figura 27 - Erro padrão médio (*loss*) no eixo vertical pela quantidade de interação (*epoch*) no eixo horizontal.



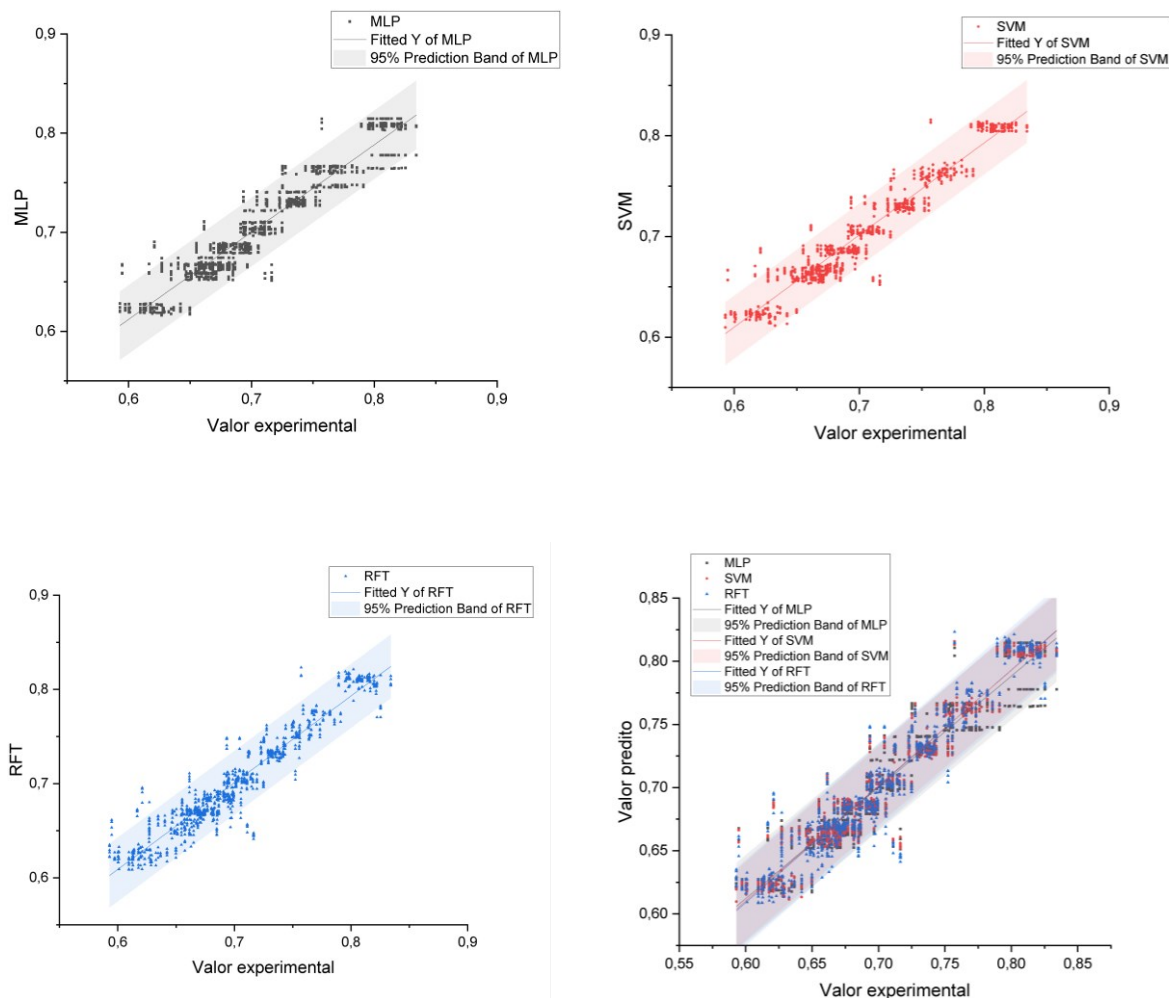
Fonte: Elaborado pelo autor.

Utilizando-se o método *deep learning*, foi possível prever razoavelmente o empacotamento de cada matéria-prima, considerando-se as inserções de entradas como granulometria e os fatores de forma dos corpos particulados. A Figura 28 mostra o valor experimental e as aproximações dos métodos de *machine learning*, mostrando a frequência relativa em que cada método mostrou o resultado indicado.

A Figura 28 mostra outra comparação entre os dados experimentais e o previstos pelas redes neurais. Nota-se que há um aumento do intervalo de confiança para granulometrias médias mostrando que nos casos extremos de empacotamento (valores máximo e mínimo), onde as granulometrias não promovem um elevado ajuste, há uma maior disparidade entre os valores previstos e experimentais.

Analisando os resultados, verifica-se que há dificuldade de os métodos aplicados identificarem valores extremos de baixo e alto empacotamento, devido à baixa representatividade estatística dos dados e sua extrapolação ao caso real. No entanto, as previsões dos modelos concordam com boa aproximação com as medidas experimentais de empacotamento. Sendo assim, verifica-se a necessidade de alimentar os modelos com mais dados extremos.

Figura 28 - Medidas experimentais e o valor estimado pelos modelos de ML. A reta obtida do ajuste aos dados se encontra em um intervalo de confiança de 95%.



Conforme a Tabela 5, o método de modelagem por rede neural MLP replicou os resultados com precisão e variação próxima comparado aos outros métodos aplicados, sendo um método adequado para a previsão da densidade de empacotamento de partículas dos tipos estudadas.

Tabela 5 - Dados estatísticos de ajuste dos métodos utilizados.

	MLP	SVM	RFT
Número de pontos	1010	1010	1010
Residual da soma dos quadrados	0,31258	0,25442	0,29993
R^2	0,89577	0,91911	0,90726

Cabe ressaltar que a separação dos modelos pela aproximação linear pelo método SVM nos hiperespaços apresentou a melhor precisão, o que está de acordo com os autores que sugeriram que um modelo de empacotamento linear, com suas devidas aproximações e efeitos multifatoriais não lineares, seria adequado para a determinação da densidade de empacotamento de granulometrias de tamanhos próximos^{14,15,18,19,20,22,29,32,33,36,37,38,39,40}.

A aplicabilidade científica e tecnológica dos modelos é promissora devido a crescente automatização do processo de extração dos dados e o aumento da capacidade computacional de simulação, que podem gerar uma maior base estatística, prevendo comportamentos distintos em condições afetadas por inúmeras variáveis.

6 Conclusões

As variáveis de moagem polidispersa não podem ser descritas somente como seu espaçamento entre placas, devido as disparidades nas distribuições granulométricas. Variáveis como razão de aspecto e esfericidade seguem com o decréscimo de granulometria aproximando a valores próximos de 1, no entanto a solidez pode apresentar diferentes comportamentos, sendo o mais pronunciado o estreitamento durante a diminuição da granulometria. A dimensão fractal revelou uma diferença significava entre granulometrias de 150 μ m, ambas provenientes da moagem, sendo a partícula de vidro temperado mais rugosa em comparação à areia. Já o efeito da granulometria mais fina e grossa (extremos) produziu um aumento de porosidade, mostrando que os casos de maior empacotamento gerado não são perfeitamente escaláveis e sim de uma ampla faixa.

Os métodos apresentam *overfitting* devido a sua precisão elevada e baixa variabilidade dos dados, onde se acentua principalmente nas redes neurais por sua elevada dimensionalidade para treinar o modelo. A dimensionalidade dos dados compromete a confiabilidade dos modelos de *machine learning*, necessitando de uma maior simplificação da dimensão da amostra ou aumento do espaço amostral.

Os métodos de *machine learning* aplicados, a saber, redes neurais, Support Vector Machine e Random Forest Tree, foram capazes de determinar com boa precisão a densidade de empacotamento de partículas de areia e vidro temperado moído. A extensiva caracterização das produziu dados suficientes para a construção de tais métodos. Apesar das demandas iniciais do modelo para implementação do modelo serem elevadas, após o treinamento o modelo consegue correlacionar as demais variáveis para encontrar a densidade de empacotamento dos pós de areia e vidro.

A aplicação dos modelos depende intrinsecamente dos valores inseridos, precisão experimental e seus métodos de aproximação, sendo aplicável em alta escala, bem como a possibilidade de análise multifatorial e retroalimentação.

7 Referências bibliográficas

- 1 Leibniz, G. W. **The Quadrature of the Circle by a Rational Progression** (10 September – October 1674)
- 2 F. Soddy, *Nature* 139, 77-79 (1937).
- 3 Mandelbrot B. B. (1983). **The fractal geometry of nature** (Updated and augmented). W.H. Freeman.
- 4 Borkovec, M., De paris, W., & Peikert, R. (1994). **The fractal dimension of the apollonian sphere packing.** *Fractals*, 02(04), 521–526. <https://doi.org/10.1142/S0218348X94000739>
- 5 Feret, R. (1892) **Sur la compacité des mortiers hydrauliques.** *Annales des Ponts et Chaussées*. Vol. 4 (2e semestre), pp. 5-16.
- 6 Fuller, W. B. and Thompson, S. E. (1907), “**The laws of proportioning concrete**”, *ASCE J. Transport.*, 59.
- 7 Barringer, E. A., & Bowen, H. K. (1988). **Effects of particle packing on the sintered microstructure.** *Applied Physics A Solids and Surfaces*, 45(4), 271–275. <https://doi.org/10.1007/BF00617931>
- 8 Talbot, A.N. and Richart, F.E. (1923) **The strength of concrete in relation to the cement, aggregates and water.** *University of Illinois Engineering Experiment Station*, Bulletin No.137.
- 9 Andreasen, A.H.M., **Zur Kenntnis des Mahlgutes,** *Kolloidchemische Beihefte*, 27, 349-358 (1928).
- 10 Andreasen, A.H.M., “**Über die Gültigkeit des Stokes'schen Gesetzes für nicht kugelförmige Teilchen,**” *Kolloid Z*, 48, 175-179 (1929).
- 11 Andreasen, A.H.M., and Andersen, J., “**Ueber die Beziehung zwischen Kornabstufung und Zwischenraum in Produkten aus losen Koemem (mit einigen Experimenten),**” *Kolloid-Z.*, 50, 217-228 (1930).
- 12 Furnas C. C. & United States Bureau of Mines. (1928). **The relations between specific volume voids and size composition in systems of broken**

solids of mixed sizes. *Dept. of Commerce Bureau of Mines.*

13 Furnas, C.C. (1931) **Grading Aggregates; Mathematical Relations for Beds of Broken Solids of Maximum Density.** *Industrial and Engineering Chemistry.* Vol. 23 (9), pp. 1052-1058.

14 Westman, A. E. R., & Hugill, H. R. (1930). **THE PACKING OF PARTICLES.** *Journal of the American Ceramic Society,* 13(10), 767–779. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1930.tb16222.x>

15 Westman, A. E. R. (1936). **THE PACKING OF PARTICLES: EMPIRICAL EQUATIONS FOR INTERMEDIATE DIAMETER RATIOS.** *Journal of the American Ceramic Society,* 19(1–12), 127–129. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1936.tb19809.x>

16 Funk, J.E., Dinger, D.R., Funk, J.E. Jr., **Coal Grinding and Particle Size Distribution Studies for Coal-Water Slurries at High Solids Content,** *Final Report, Empire State Electric Energy Research Corporation (ESEERCO),* New York, NY, December (1980).

17 Funk, J.E., Dinger, D.R., and Funk, J.E., **Status Report of Development of a 75 Weight Percent Coal-Water Slurry,** *Proceedings of the 5th International Conference on Slurry Transportation,* Slurry Transport Association, Lake Tahoe, NV, p. 115-118, MAR, 1980.

18 Funk, J.E. and Dinger, D.R. (1994) **Predictive Process Control of Crowded Particulate Suspensions - Applied to Ceramic Manufacturing.** Boston: Kluwer Academic Publishers.

19 De Larrard, F., & Sedran, T. (1994). **Optimization of ultra-high-performance concrete by the use of a packing model.** *Cement and Concrete Research,* 24(6), 997–1009. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(94\)90022-1](https://doi.org/10.1016/0008-8846(94)90022-1)

20 Larrard, F. de (1999) **Concrete mixture proportioning: a scientific approach.** London: E & FN Spon.

21 Larrard, F. de, Lédée, V., Sedran, T. Brochu, F. and Ducassou, J. (2003) **New test for measuring the compactness of granular fractions on the shock table.**

Bulletin des Laboratoires des Ponts et Chaussées 246-247, réf 4492. pp. 101-115

22 Cumberland, D. J., & Crawford, R. J. (1987). **The packing of particles.**

23 Caquot, A. (1937) **Rôle des matériaux inertes dans le béton.** *Mémoire de la Société des Ingénieurs Civils de France*, July-August.

24 Ben-Aïm, R. (1970) **Etude de la texture des empilements de grains. Application a la détermination de la perméabilité des mélanges binaires en régime moléculaire,intermediate, laminaire.** These d'Etat de l'Université de Nancy.

25 Benenati, R. F., & Brosilow, C. B. (1962). **Void fraction distribution in beds of spheres.** *AIChE Journal*, 8(3), 359–361.
<https://doi.org/10.1002/aic.690080319>

26 Aïm, R. B., & Goff, P. L. (1968). **Effet de paroi dans les empilements désordonnés de sphères et application à la porosité de mélanges binaires.** *Powder Technology*, 1(5), 281–290. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(68\)80006-3](https://doi.org/10.1016/0032-5910(68)80006-3)

27 Wu, Y., An, X., & Yu, A. B. (2017). **DEM simulation of cubical particle packing under mechanical vibration.** *Powder Technology*, 314, 89–101.
<https://doi.org/10.1016/j.powtec.2016.09.029>

28 Dodds, J., & Kuno, H. (1977). **Computer simulation and statistical geometric model for contacts in binary random two-dimensional disk packings.** *Nature*, 266(5603), 614–615. <https://doi.org/10.1038/266614a0>

29 Davis, I. L., & Carter, R. G. (1990). **Random particle packing by reduced dimension algorithms.** *Journal of Applied Physics*, 67(2), 1022–1029.
<https://doi.org/10.1063/1.345785>

30 Stroeven, P., & Stroeven, M. (1999). **Assessment of packing characteristics by computer simulation.** *Cement and Concrete Research*, 29(8), 1201–1206. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(99\)00020-4](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(99)00020-4)

31 White, H. E., & Walton, S. F. (1937). **PARTICLE PACKING AND PARTICLE SHAPE.** *Journal of the American Ceramic Society*, 20(1–12), 155–166.
<https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1937.tb19882.x>

32 McGeary, R. K. (1961). **Mechanical Packing of Spherical Particles.** *Journal of the American Ceramic Society*, 44(10), 513–522. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1961.tb13716.x>

33 Sohn, H. Y.. “**Packing Density and Size Distribution**”, M.Sc. Thesis. Dept. of Chem. Eng., Univ. New Brunswick, 1966.

34 Chang, C. S., & Deng, Y. (2017). **A particle packing model for sand–silt mixtures with the effect of dual-skeleton.** *Granular Matter*, 19(4), 80. <https://doi.org/10.1007/s10035-017-0762-1>

35 Averardi, A., Cola, C., Zeltmann, S. E., & Gupta, N. (2020). **Effect of particle size distribution on the packing of powder beds: A critical discussion relevant to additive manufacturing.** *Materials Today Communications*, 24, 100964. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2020.100964>

36 Stovall, T., de Larrard, F., & Buil, M. (1986). **Linear packing density model of grain mixtures.** *Powder Technology*, 48(1), 1–12. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(86\)80058-4](https://doi.org/10.1016/0032-5910(86)80058-4)

37 Fennis-Huijben, S. A. A. (2010). **Design of ecological concrete by particle packing optimization.**

38 Fennis, S. A. A. M., Walraven, J. C., & den Uijl, J. A. (2013). **Compaction-interaction packing mode.Regarding the effect of fillers in concrete mixture design.** *Materials and Structures/Materiaux et Constructions*, 46(3), 463–478. <https://doi.org/10.1617/s11527-012-9910-6>

39 Ayer, J. E., & Soppet, F. E. (1965). **Vibratory Compaction: I, Compaction of Spherical Shapes.** *Journal of the American Ceramic Society*, 48(4), 180–183. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1965.tb14708.x>

40 Ayer, J. E., & Soppet, F. E. (1966). **Vibratory Compaction: II, Compaction of Angular Shapes.** *Journal of the American Ceramic Society*, 49(4), 207–210. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1966.tb13235.x>

41 Milewski, J. V. (1973). **A study of the packing of milled fibreglass and glass beads.** *Composites*, 4(6), 258–265. <https://doi.org/10.1016/0010->

4361(73)90392-3

42 Zheng, J., Johnson, P. F., & Reed, J. S. (1990). **Improved Equation of the Continuous Particle Size Distribution for Dense Packing.** *Journal of the American Ceramic Society*, 73(5), 1392–1398. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1990.tb05210.x>

43 Philipse, A. P. (1996). **The Random Contact Equation and Its Implications for (Colloidal) Rods in Packings, Suspensions, and Anisotropic Powders.** *Langmuir*, 12(5), 1127–1133. <https://doi.org/10.1021/la950671o>

44 Eric Lee (2019), **Chapter 1 - Electrophoresis of a Single Rigid Particle, Editor: Eric Lee, Interface Science and Technology, Elsevier, Volume 26, 3-45.** <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-100865-2.00001-1>.

45 Williams, S. R., & Philipse, A. P. (2003). **Random packings of spheres and spherocylinders simulated by mechanical contraction.** *Physical Review E*, 67(5), 051301. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.67.051301>

46 Wouterse, A., Williams, S. R., & Philipse, A. P. (2007). **Effect of particle shape on the density and microstructure of random packings.** *Journal of Physics: Condensed Matter*, 19(40), 406215. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/19/40/406215>

47 Zhao, J., Li, S., Zou, R., & Yu, A. (2012). **Dense random packings of spherocylinders.** *Soft Matter*, 8(4), 1003–1009. <https://doi.org/10.1039/C1SM06487H>

48 Hesse, R., Krull, F., & Antonyuk, S. (2021). **Prediction of random packing density and flowability for non-spherical particles by deep convolutional neural networks and Discrete Element Method simulations.** *Powder Technology*, 393, 559–581. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2021.07.056>

49 Philipse, A. P. (1996). **The Random Contact Equation and Its Implications for (Colloidal) Rods in Packings, Suspensions, and Anisotropic Powders.** *Langmuir*, 12(5), 1127–1133. <https://doi.org/10.1021/la950671o>

50 Zou, R. P., & Yu, A. B. (1996). **Evaluation of the packing characteristics of mono-sized non-spherical particles.** *Powder Technology*, 88(1), 71–

79. [https://doi.org/10.1016/0032-5910\(96\)03106-3](https://doi.org/10.1016/0032-5910(96)03106-3)

51 Kwan, A. K. H., & Mora, C. F. (2001). **Effects of various shape parameters on packing of aggregate particles.** *Magazine of Concrete Research*, 53(2), 91–100. <https://doi.org/10.1680/mac.2001.53.2.91>

52 Meng, L., Lu, P., Li, S., Zhao, J., & Li, T. (2012). **Shape and size effects on the packing density of binary spherocylinders.** *Powder Technology*, 228, 284–294. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2012.05.033>

53 Mooney, M. (1951). **The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles.** *Journal of Colloid Science*, 6(2), 162–170. [https://doi.org/10.1016/0095-8522\(51\)90036-0](https://doi.org/10.1016/0095-8522(51)90036-0)

54 Shinbrot, T. (2004). **The brazil nut effect — in reverse.** *Nature*, 429(6990), 352–353. <https://doi.org/10.1038/429352b>

55 Sutcu, M., & Akkurt, S. (2007). **ANN model for prediction of powder packing.** *Journal of the European Ceramic Society*, 27(2–3), 641–644. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2006.04.044>

56 Singh, S. K., Pranathi, B. M., & Kirthika, S. K. (2020). **Prediction of Particle Packing Density of Alternative Fine Aggregates by Artificial Neural Network Applications.** *Journal of The Institution of Engineers (India): Series A*, 101(1), 127–140. <https://doi.org/10.1007/s40030-019-00412-9>

57 Sanchez-Gonzalez, A., Godwin, J., Pfaff, T., Ying, R., Leskovec, J., & Battaglia, P. W. (2020). **Learning to Simulate Complex Physics with Graph Networks.**

58 Dingqiang, F., Rui, Y., Zhonghe, S., Chunfeng, W., Jinnan, W., & Qiqi, S. (2020). **A novel approach for developing a green Ultra-High Performance Concrete (UHPC) with advanced particles packing meso-structure.** *Construction and Building Materials*, 265, 120339. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.120339>

59 Yang, D., Wang, X., Zhang, H., Yin, Z., Su, D., & Xu, J. (2021). **A Mask R-CNN based particle identification for quantitative shape evaluation of granular materials.** *Powder Technology*, 392, 296–305.

<https://doi.org/10.1016/j.powtec.2021.07.005>

60 Song, H. Y., & Li, Y. L. (2016). **Atomistic study of crack growth behavior in crystalline Mg/amorphous Mg–Al nanocomposites**. *Computational Materials Science*, 111, 125–130. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2015.09.023>

61 Ramirío R. F.; Pamplona D. R. P.; Franklin Junior I.; Collares E. G. **Estudo comparativo de rejeitos de quartzito com outros agregados comercialmente utilizados como materiais de construção no sudoeste de Minas Gerais**. *Ciência et Praxis* (2008) v. 1, n. 1.

62 Gaudin, A. M., & Hukki, R. T. (1944). **Principles of comminution-size and surface distribution**. *Trans AIME*, 169, 67.

63 D. A. Abrams, **Design of Concrete Mixtures**. *Chicago, USA: Structural Materials Research Laboratory*, 1924

64 Borges, P. H. R., Fonseca, L. F., Nunes, V. A., Panzera, T. H., & Martuscelli, C. C. (2014). **Andreasen Particle Packing Method on the Development of Geopolymer Concrete for Civil Engineering**. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 26(4), 692–697. [https://doi.org/10.1061/\(asce\)mt.1943-5533.0000838](https://doi.org/10.1061/(asce)mt.1943-5533.0000838)

65 Londero, C., Lenz, L. A., dos Santos, M. R., & Klein, N. S. (2017). **Determinação da densidade de empacotamento de sistemas granulares compostos a partir da areia normal do IPT: comparação entre modelos de otimização de distribuição granulométrica e composições aleatórias**. *Cerâmica*, 63(365), 22–33. <https://doi.org/10.1590/0366-69132017633652018>

66 Singh, S. K., Pranathi, B. M., & Kirthika, S. K. (2020). **Prediction of Particle Packing Density of Alternative Fine Aggregates by Artificial Neural Network Applications**. *Journal of The Institution of Engineers (India): Series A*, 101(1), 127–140. <https://doi.org/10.1007/s40030-019-00412-9>

67 Messing, G. L., & Onoda, G. Y. (1978). **Inhomogeneity-Packing Density Relations in Binary Powders-Experimental Studies**. *Journal of the American Ceramic Society*, 61(7–8), 363–366. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1978.tb09329.x>

68 Kwan, A. K. H., Chan, K. W., & Wong, V. (2013). **A 3-parameter**

particle packing model incorporating the wedging effect. *Powder Technology*, 237, 172–179. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.01.043>

69 Borges, P. H. R., Fonseca, L. F., Nunes, V. A., Panzera, T. H., & Martuscelli, C. C. (2014). **Andreasen Particle Packing Method on the Development of Geopolymer Concrete for Civil Engineering.** *Journal of Materials in Civil Engineering*, 26(4), 692–697. [https://doi.org/10.1061/\(asce\)mt.1943-5533.0000838](https://doi.org/10.1061/(asce)mt.1943-5533.0000838)

70 Roquier, G. (2016). **The 4-parameter Compressible Packing Model (CPM) including a new theory about wall effect and loosening effect for spheres.** *Powder Technology*, 302, 247–253. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2016.08.031>

71 Mie, G. (1908). **Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen.** *Annalen Der Physik*, 330(3), 377–445. <https://doi.org/10.1002/andp.19083300302>

72 Lee, Y.-H., Carr, J. R., Barr, D. J., & Haas, C. J. (1990). **The fractal dimension as a measure of the roughness of rock discontinuity profiles.** *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 27(6), 453–464. [https://doi.org/10.1016/0148-9062\(90\)90998-h](https://doi.org/10.1016/0148-9062(90)90998-h)

73 **ImageJ User guide. V Menu commands 30 Analyze.** Available from <http://imagej.nih.gov/ij/docs/guide/146-30.html#toc-Subsection-30.2>

74 Metropolis, N., & Ulam, S. (1949). **The Monte Carlo Method.** *Journal of the American Statistical Association*, 44(247), 335. <https://doi.org/10.2307/2280232>

75 McCulloch, W. S., & Pitts, W. (1943). **A logical calculus of the ideas immanent in nervous activity.** *The Bulletin of Mathematical Biophysics*, 5(4), 115–133. <https://doi.org/10.1007/BF02478259>

76 Lu, L., Shin, Y., Su, Y., & Karniadakis, G. E. (2019). **Dying relu and initialization: Theory and numerical examples.** *ArXiv Preprint ArXiv:1903.06733*.

77 Kingma, D. P., & Ba, J. (2014). **Adam: A Method for Stochastic Optimization.**

78 Srivastava, N., Hinton, G., Krizhevsky, A., Sutskever, I., & Salakhutdinov, R. (2014). **Dropout: A Simple Way to Prevent Neural Networks from Overfitting.** *J. Mach. Learn. Res.*, 15(1), 1929–1958.

79 Train/Val Accuracy. Disponível online: <http://cs231n.github.io/neural-networks-3/#accuracy> (acesso em 10 Agosto 2023).

80 Kandel, I., & Castelli, M. (2020). **The effect of batch size on the generalizability of the convolutional neural networks on a histopathology dataset.** *ICT Express*, 6(4), 312–315. <https://doi.org/10.1016/j.icte.2020.04.010>

81 Epoch in Neural Networks. Disponível online: <https://www.baeldung.com/cs/epoch-neural-networks#:~:text=An%20epoch%20means%20training%20the,to%20train%20the%20neural%20network.> (acesso em 10 Agosto 2023).

82 Chang, C.-C., & Lin, C.-J. (2011). LIBSVM. **ACM Transactions on Intelligent Systems and Technology**, 2(3), 1–27. <https://doi.org/10.1145/1961189.1961199>

83 Schölkopf, B., Burges, C., & Vapnik, V. (1996). **Incorporating invariances in support vector learning machines** (pp. 47–52). https://doi.org/10.1007/3-540-61510-5_12

84 Schölkopf, B., Simard, P., Smola, A. J., & Vapnik, V. N. (1998). **Prior knowledge in support vector kernels.** *MI Jordan, MJ Kearns and S. Solla (editors)* Advances in Neural Information Processings Systems. MIT Press, Cambridge, MA.

85 Blanz, V., Schölkopf, B., Bühlhoff, H., Burges, C., Vapnik, V., & Vetter, T. (1996). **Comparison of view-based object recognition algorithms using realistic 3D models** (pp. 251–256). https://doi.org/10.1007/3-540-61510-5_45

86 Smola, A. J., & Schölkopf, B. (2004). **A tutorial on support vector regression.** *Statistics and Computing*, 14(3), 199–222. <https://doi.org/10.1023/B:STCO.0000035301.49549.88>

87 Support Vector Machines. (2023, September 10). Scikit Learn.

88 Scikit-learn: **Machine Learning in Python**, Pedregosa et al., *JMLR* 12, pp. 2825-2830, 2011.

89 Breiman, L. (2001). **Random Forests**. *Machine Learning*, 45(1), 5–32. <https://doi.org/10.1023/A:1010933404324>

90 Schonlau, M., & Zou, R. Y. (2020). **The random forest algorithm for statistical learning**. *The Stata Journal*, 20(1), 3–29. <https://doi.org/10.1177/1536867X20909688>

91 Geurts, P., Ernst, D., & Wehenkel, L. (2006). **Extremely randomized trees**. *Machine Learning*, 63(1), 3–42. <https://doi.org/10.1007/s10994-006-6226-1>

92 Tukey, J. W. (1953). **The problem of multiple comparisons**. *Unpublished manuscript*. In *The Collected Works of John W. Tukey VIII. Multiple Comparisons: 1948–1983* 1–300. Chapman and Hall, New York.

93 Serfling, R. J. 1980. **Approximation Theorems of Mathematical Statistics**, Wiley, New York