



**(11) PI 1013723-8 B1**



\* B R P I 1 0 1 3 7 2 3 B 1 \*

**(22) Data do Depósito: 20/04/2010**

**República Federativa do Brasil**

Ministério da Economia

Instituto Nacional da Propriedade Industrial

**(45) Data de Concessão: 10/12/2019**

**(54) Título:** COMPOSIÇÃO ALIMENTAR PARA RUMINANTE, E, MÉTODOS DE SUPLEMENTAÇÃO DA DIETA DE UM RUMINANTE COM LISINA E DE PRODUÇÃO DE UMA COMPOSIÇÃO ALIMENTAR PARA RUMINANTE

**(51) Int.Cl.:** A23K 50/10; A23K 20/142; A23K 40/35.

**(52) CPC:** A23K 50/10; A23K 20/142; A23K 40/35.

**(30) Prioridade Unionista:** 23/04/2009 US 61/202,969.

**(73) Titular(es):** H.J. BAKER & BRO., LLC.

**(72) Inventor(es):** DANNY R. WRIGHT; RICHARD J. VALAGENE.

**(86) Pedido PCT:** PCT US2010031724 de 20/04/2010

**(87) Publicação PCT:** WO 2010/123878 de 28/10/2010

**(85) Data do Início da Fase Nacional:** 21/10/2011

**(57) Resumo:** COMPOSIÇÃO ALIMENTAR PARA RUMINANTE, E, MÉTODOS DE SUPLEMENTAÇÃO DA DIETA DE UM RUMINANTE COM LISINA E DE PRODUÇÃO DE UMA COMPOSIÇÃO ALIMENTAR PARA RUMINANTE A presente invenção refere-se a uma composição alimentar para ruminantes, tendo um núcleo granulado tendo pelo menos uma substância ativa e pelo menos uma camada de um material de revestimento que circunda o núcleo, o material de revestimento compreendendo um óleo vegetal e um agente de modificação. Os agentes de modificação incluem ácido esteárico, ácido oleico, lecitina e óleo de palma. Também descritos são os métodos para a produção de uma composição alimentar para ruminantes.

**Relatório Descritivo da Patente de Invenção para "COMPOSIÇÃO ALIMENTAR PARA RUMINANTE, E, MÉTODOS DE SUPLEMENTAÇÃO DA DIETA DE UM RUMINANTE COM LISINA E DE PRODUÇÃO DE UMA COMPOSIÇÃO ALIMENTAR PARA RUMINANTE".**

**ANTECEDENTES**

5           A presente invenção refere-se a suplementos alimentícios granulares para animais ruminantes. Em particular, esta descrição provê um suplemento alimentício granular para ruminante em que a substância fisiologicamente ativa é estável no rúmen de um animal ruminante e é digerida e absorvida no abomaso e trato digestivo subsequente. Estão também descritos um método de fazer e um método de usar o suplemento alimentar granular.

Animais ruminantes são mamíferos da subordem Ruminantia que têm um estômago dividido em quarto compartimentos morfológicamente distintos: o rúmen, o retículo, o omaso e o abomaso. O rúmen e o retículo são derivados da porção terminal do esôfago, e somente o omaso e o abomaso são considerados como sendo um estômago genuíno. As bactérias presentes no rúmen permitem aos ruminantes digerirem materiais celulósicos como relva. A digestão convencional ocorre no abomaso, às vezes chamado de o "estomago verdadeiro". Ruminantes bem conhecidos são gado, ovelha, e cabras.

20           O rúmen, que é essencialmente um fermentador contínuo, suporta uma variedade de micro-organismos sob condições neutras que atacam e digerem muito dos produtos alimentícios ingeridos consumidos por um ruminante como parte de seu ciclo de vida normal. Material de proteína ingerido é esgotado no rúmen para peptídeos solúveis e aminoácidos que  
25           são usados como nutrientes pelos microorganismos. Um fluxo de ingesta, rico em células microbianas, passa por fora do rúmen para dentro do omaso. A função do omaso é separar líquidos e sólidos. Grande parte do líquido torna a entrar no rúmen enquanto o restante do material entra no abomaso. Digestão e absorção depois prosseguem no abomaso de uma maneira  
30           similar àquela encontrada no monogástrico. Enzimas secretadas no lúmen do abomaso digerem maior parte do material, incluindo as células microbianas. As células microbianas digeridas provêm proteína e aminoáci-

dos para o ruminante.

A ação microbiana do rúmen tem a grande vantagem de ser capaz de converter muitos componentes alimentares que não têm valor nutritivo direto para o hospedeiro, em produtos que podem ser assimilados e utilizados pelo hospedeiro. Por exemplo, uréia pode ser convertida em proteína microbiana subsequentemente pode ser digerida e utilizada pelo animal hospedeiro. Celulose pode ser convertida em uma mistura de ácidos graxos voláteis que podem servir como uma fonte de energia para o hospedeiro.

Infelizmente, esta ação microbiana também apresenta certas desvantagens. Por exemplo, as proteínas solúveis de alto valor nutritivo podem ser decompostas e digeridas no rúmen e em parte ressintetizadas em proteínas microbianas de baixo valor nutritivo. Os aminoácidos também são quimicamente modificados no rúmen pelos micro-organismos, os quais convertem os aminoácidos em dióxido de carbono, ácidos graxos voláteis, e amônia.

Todas as proteínas presentes em animais são constituídas pelas combinações de mais do que 20 aminoácidos diferentes. Dentre estes, dez aminoácidos “essenciais” não são adequadamente sintetizados no corpo animal, e os animais devem tomá-los. Quando há carência dos aminoácidos essenciais na dieta do ruminante, a saúde do ruminante, a produção do leite, etc., são todas negativamente afetadas.

É prática comum na produção de ruminante fornecer substâncias biologicamente ativas na dieta diária dos animais a fim de melhorar suas condições de saúde e seu desempenho produtivo. Substâncias ativas de interesse incluem aminoácidos, vitaminas, enzimas, nutrientes tais como proteínas e carboidratos, micro-organismos probióticos, alimentos prebióticos, sais minerais, colina, etc. Algumas destas substâncias já estão normalmente presentes nos alimentos usados para a alimentação de animais. Algumas vezes a quantidade de substâncias ativas essenciais presentes na dieta pode ser insuficiente ou inadequada para lidar com os estados de deficiência ou situações de alta produtividade. Portanto, é desejável formular

ou suplementar cuidadosamente a dieta diária dos animais ruminantes a fim de focar nessas preocupações.

No entanto, quando substâncias fisiologicamente ativas tais como aminoácidos e proteínas são oralmente alimentadas, uma parte substancial da substância (por exemplo, proteínas, aminoácidos, etc.) é decomposta por micro-organismos no rúmen, tornando difícil ou impossível para o animal utilizar eficazmente todas proteínas e os aminoácidos contidos na alimentação administrados, etc. Assim, os aminoácidos essenciais são destruídos e tornados indisponíveis para a produção animal. A produção animal é limitada pelo fornecimento de aminoácidos individuais essenciais que escapam, ou desviam, do rúmen intactos e alcançam o trato gastrointestinal inferior onde eles podem ser absorvidos e se tornam disponíveis para a produção animal.

Consequentemente, é importante passar as substâncias biologicamente ativas através do rúmen sem a decomposição pelos micro-organismos para permitir que as substâncias biologicamente ativas sejam digeridas e absorvidas eficazmente no abomaso e subsequente trato digestivo. Consequentemente, um grande esforço foi gasto em direção ao fornecimento de uma biossubstância ativa em uma forma que passará através do rúmen essencialmente inalterada, e ainda sofre desintegração e absorção no abomaso.

Existem numerosas metodologias que são projetadas para aumentar a quantidade de um nutriente que passa através do rúmen sem ser degradado pela microflora no rúmen, dessa forma liberando uma porção maior daquele nutriente para o trato gastrointestinal inferior, incluindo: tratamento térmico e químico, encapsulamento e revestimento, uso de análogos de aminoácido, e compostos poliméricos de aminoácidos.

Por exemplo, tem sido proposto revestir os aditivos alimentares do animal ruminante contendo substâncias biologicamente ativas com substâncias protetoras, tais como ácidos graxos, óleos animais endurecidos, e óleos vegetais endurecidos. No entanto, partículas revestidas com estas gorduras e óleos são estáveis não somente no rúmen, mas também no

abomaso e subsequente trato digestivo, tornando as substâncias biologicamente ativas difíceis de serem liberadas no abomaso e subsequente trato digestivo.

Um outro método proposto utiliza a diferença no pH entre o rúmen e o abomaso pelo revestimento com um polímero que é insolúvel no ambiente do rúmen mas é solúvel no abomaso fortemente ácido. Tais polímeros incluem polivinilpirrolidona, poliamidas, e celuloses que têm sido quimicamente modificados. Esta solução tem a desvantagem de um alto custo de produção, combinado com o fato de que o uso de polímeros sintéticos introduz substâncias não fisiológicas na dieta do animal. Tais produtos com revestimento de polímero, portanto, requerem a aprovação de FDA.

Algumas patentes descrevem o revestimento de substâncias biologicamente ativas com material que supostamente sobrevive no rúmen, mas degrada no abomaso.

Por exemplo, a Patente U.S. No. 3.541.204 descreve gorduras animais e vegetais hidrogenadas e ceras tais como cera de farelo de arroz como revestimentos que sobrevivem no rúmen, mas são rompidos no trato intestinal.

A Patente U.S. No. 3.959.493 descreve a utilização de ácidos graxos alifáticos tendo pelo menos 14 átomos de carbono cada um. Os ácidos graxos são aplicados como um revestimento a um nutriente individual. Os ácidos graxos são considerados resistentes à degradação no rúmen. Os agentes ativos são a seguir liberados para o abomaso e/ou intestino onde os ácidos graxos são reduzidos no ambiente pós-ruminal.

A Patente U.S. No. 4.642.317 descreve um processo para o fornecimento de ácidos graxos aos ruminantes na forma de seus sais de cálcio. No entanto, o uso único de sais de ácido graxo como aditivos alimentares cria um odor distintamente desagradável a partir da oxidação dos voláteis orgânicos na alimentação causando uma redução na absorção do alimento e rendimento do leite.

A Patente U.S. No. 4.713.245 descreve um grânulo que sobrevive no rúmen compreendendo um núcleo de material bioativo, uma substâ-

cia de revestimento estável em pH neutro (como verificado no rúmen) mas dissolvida ou desintegrada em pH=3 (como verificado no abomaso), e pelo menos um outro revestimento selecionado do grupo consistindo em ácidos graxos tendo pelo menos 14 átomos de carbono e ceras, gordura animal, e 5 gordura vegetal tendo um ponto de fusão de 40°C ou maior.

A Patente U.S. No. 4.808.412 descreve uma composição estável no rúmen contendo um agente ativo molecularmente dissolvido com um polímero básico. O agente ativo é liberado pós-ruminalmente porque o polímero é resistente a um pH de mais do que cerca de 5, mas é solúvel ou 10 intumescível em um pH de menos do que cerca de 3,5. Neste tipo de dispersão, algum agente ativo e, e próximo da superfície da composição será destruído pela ação de micróbios ruminais visto que rachaduras ou canais podem ocorrer na superfície, reduzindo a eficácia da proteção.

A Patente U.S. No. 4.832.967 descreve um a revestimento de 15 duas camadas que sobrevivem no rúmen para substâncias bioativas solúveis em água. O particulado resultante é estável em pH pelo menos tão alto quanto 5,5, e libera a substância bioativa em pH de 3,5 ou menos. O meio do revestimento compreende uma primeira camada de revestimento interno consistindo em variações do material sensível ao pH e uma segunda 20 camada de revestimento externo consistindo em uma composição hidrofóbica que deve incluir material de enchimento orgânico se o núcleo bioativo não tiver sofrido um tratamento de superfície (aplicação de aglutinante hidrofóbico). Esta camada de revestimento externa hidrofóbica é fornecida com uma textura que permite a difusão ou penetração do meio líquido 25 externo. O revestimento externo contém preferivelmente uma mistura de substâncias hidrofóbicas.

A Patente U.S. No. 4.876.097 descreve a composição de revestimento que é estável a pH menor do que ou igual a cerca de 3.5. O revestimento compreende um aglutinante insolúvel em água para formação 30 de película que contém uma substância que controla a hidrofilidade, e opcionalmente uma substância que é sensível ao pH. Ambas as ceras (hidrofóbicas) e propileno glicol (solúvel em água) são adequadas para o

controle do equilíbrio hidrofílico/hidrofóbico. Diz-se que o controle da hidrofilidade da partícula limita a liberação do material bioativo no meio neutro ou levemente ácido, isto é, no rúmen. Em um meio muito ácido, isto é, o abomaso, os materiais de enchimento sensíveis ao pH são ativados 5 pelo meio, o qual difunde levemente em uma taxa estabelecida pela hidrofilidade do revestimento. A dissolução ou intumescimento resultante do material de enchimento sensível ao pH degrada o revestimento e libera o material bioativo.

A Patente U.S. No. 5.093.128 descreve um revestimento nutritivo de microesfera que inclui gorduras e produtos à base de cálcio. Os 10 nutrientes ruminantes revestidos têm a desvantagem de fratura ou abrasão seja no manuseio ou ao ser mastigado pelo animal.

A Patente U.S. No. 5.145.695 provê um método em que uma composição alimentar particular que libera um equilíbrio melhorado de 15 aminoácidos essenciais pós-ruminalmente é alimentada a uma vaca.

A Patente U.S. No. 5.227.166 descreve um suplemento alimentar para ruminantes consistindo em uma substância biologicamente ativa revestida, tal como um aminoácido, fármaco ou vitamina. A composição de revestimento compreende lecitina, pelo menos uma substância inorgânica 20 que é estável em neutralidade e solúvel sob condições ácidas, e pelo menos uma substância selecionada do grupo consistindo em ácidos monocarbôxílicos de cadeia reta ou de cadeia ramificada saturados ou insaturados tendo 14 a 22 átomos de carbono, sais dos mesmos, óleos vegetais endurecidos, óleos animais endurecidos, e ceras.

A Patente U.S. No. 5.496.571 descreve um método de encapsulamento da colina para produzir um suplemento de desvio do rúmen para ruminantes. Este tipo de encapsulamento produz partículas esféricas tendo 25 um núcleo de colina circundado por uma capa de gordura. O encapsulamento é um processo de fabricação relativamente caro. Além disso, o alto grau de saturação da gordura necessária para a solidificação tende a reduzir a digestibilidade da colina.

A Patente U.S. No. 5.714.185 descreve um esquema para o

tratamento de substâncias de proteína com zeína/formaldeído para conferir os ingredientes protegidos da degradação no rúmen. No entanto, o formaldeído resulta na destruição e biodisponibilidade reduzida da maior parte dos aminoácidos essenciais. Broderick, G.A. et al., "Control of rate and extent of protein degradation," Phisiological Aspects of Digestion and Metabolism in Ruminants, Tsuda et al., eds., p. 541, 1991; Academic Press, London. Além disso, o nível de formaldeído algumas vezes usado é muito alto, criando preocupações com a saúde associadas com sua carcinogenicidade e não foi aprovado pelo FDA para aplicações alimentares dos animais.

A Patente U.S. No. 5.807.594 descreve um método de melhorar o ganho de peso e a eficiência de alimentação em um ruminante pelo encapsulamento de uma composição de cloreto de colina em um veículo protegido no rúmen. Materiais de encapsulamento e revestimento adequados para o uso nesta invenção incluem óleos hidrogenados, mono- e diglicerídeos, ceras, e gorduras de semente.

A Patente U.S. No. 6.022.566 descreve uma adição de gordura a uma ração alimentar e a seguir a adição de cloreto de colina encapsulado protegido no rúmen em uma quantidade proporcional à gordura adicionada. No entanto, tais revestimentos e encapsulamentos de cloreto de colina são sujeitos à abrasão, fratura, e outros abusos durante o transporte e o manuseio, dessa forma conferindo aos revestimentos permeáveis ao rúmen fluidos e micro-organismos que destroem a colina.

A Patente U.S. No. 6.229.031 descreve um método para a fabricação de suplementos alimentares ao converter os lipídeos que são subprodutos das indústrias de processamento de alimento e carne em sua forma de sal de cálcio.

A Patente U.S. No. 6.242.013 descreve um material altamente oleico protegido ruminalmente produzido pelas tostagem das sementes oleosas em altas temperaturas para proteger os ácidos graxos alimentados aos ruminantes. No entanto, os procedimentos de tostagem exigem consumo de energia de alto custo.

indica que nutrientes ruminantes revestidos são desvantajosos devido à fratura ou abrasão seja no manuseio ou ao ser mastigado pelo animal.

A Publicação de patente aberta à inspeção pública japonesa No. 60-168351 propôs um método de dispersão de uma substância biologicamente ativa em uma substância protetora que compreende a granulação de uma substância biologicamente ativa contendo pelo menos 20% em peso de carbonato de cálcio e pelo menos 10% em peso de uma substância selecionada do grupo consistindo em ácido monocarboxílico, um óleo endurecido e gordura.

10 A Publicação de patente aberta à inspeção pública japonesa No. 61-195653 propôs um processo para a dispersão de uma substância biologicamente ativa em materiais de revestimento compostos de pelo menos 10% em peso de uma substância selecionada do grupo consistindo em um ácido monocarboxílico, um óleo endurecido e gordura, e pelo menos 20% 15 em peso a não mais do que 50% em peso de um sal insolúvel de um ácido que é mais fracamente ácido do que o ácido clorídrico.

20 A Publicação de patente aberta à inspeção pública japonesa No. 63-317053 descreve um método que compreende o revestimento de uma substância biologicamente ativa com um material de revestimento contendo a substância protetora composta de um ácido monocarboxílico, óleo endurecido, lecitina, e um éster de ácido graxo de glicerina.

25 WO 96/08168 descreve um alimento para ruminante para melhorar os rendimentos de leite no gado diariamente. O alimento é composto de um composto de colina protegido no rúmen tendo um revestimento protetor contendo pelo menos um ácido graxo ou sabão de ácido graxo.

30 Watanabe et al. (K. Watanabe et al., "Effects of fat coated rumen bypass lisine and methionine on performance of dairy cows fed a diet deficient in lisine and methionina," Animal Science Journal, 77:495–502, 2006) relatam que a presente tecnologia para produzir aminoácidos produzidos no rúmen tem sido limitada à metionina. Watanabe et al. ainda relatam sobre os desafios significativos no desenvolvimento de uma lisina protegida no rúmen, devido às suas propriedades físicas e químicas. Watanabe et al.

também indicam que, de um ponto de vista industrial, foi apenas vantajoso estabelecer a tecnologia protegida no rúmen com gordura hidrogenada e/ou minerais, os quais já são registrados como ingredientes alimentares. Watanabe et al. descrevem a biodisponibilidade do cloridrato de L-lisina 5 protegido no rúmen revestido de gordura na alimentação diária das vacas e o efeito do cloridrato de L-lisina protegido no rúmen e da metionina protegida no rúmen sobre o desempenho da lactação das vacas com alto rendimento diário alimentadas com uma dieta prática à base de silagem. Watanabe et al. relatam que a disponibilidade intestinal da lisina protegida no seu rúmen 10 revestido com gordura foi calculada ser de 66,2%.

Em vista dos problemas anteriores, a necessidade ainda existe de fornecer um suplemento alimentar que proteja a substância biologicamente ativa estavelmente no rúmen de um animal ruminante e ainda permita a digestão e absorção eficazes no abomaso e subsequente trato digestivo da substância ativa. 15

#### SUMÁRIO

A presente descrição é direcionada a estas e outras necessidades ao fornecer uma composição melhorada contendo uma substância biologicamente ativa que pode ser eficazmente digerida, absorvida e 20 utilizada pelos animais ruminantes enquanto sendo um produto seguro e econômico.

Em uma modalidade, a presente descrição provê uma composição alimentar para ruminantes, compreendendo um material de núcleo granulado compreendendo pelo menos uma substância biologicamente ativa 25 e um material de revestimento circundando o material de núcleo.

Em uma modalidade, a presente descrição provê uma composição alimentar para ruminantes, compreendendo um material de núcleo granulado compreendendo pelo menos sulfato de L-lisina e um material de revestimento compreendendo um óleo vegetal hidrogenado e um agente de 30 modificação circundando o material de núcleo.

Em uma modalidade, a presente descrição provê um método de fornecer um aminoácido a um ruminante, compreendendo fornecer o

aminoácido em um núcleo granular revestido com um material de revestimento e incluindo o grânulo revestido em um alimento que é alimentado ao ruminante.

#### DESCRIÇÃO DETALHADA DAS MODALIDADES

5 As modalidades aqui a seguir se referem aos aditivos alimentares compreendendo um núcleo que é revestido de um material de revestimento, que é estável no rúmen de um animal ruminante e é digerido e absorvido no abomaso e subsequente trato digestivo.

O núcleo compreende pelo menos uma substância ativa fisiologicamente granulada ou uma substância biologicamente ativa (aqui a seguir “substância ativa”). O núcleo pode ser um grânulo único ou pode ainda incluir uma matriz compreendendo um ou mais excipientes tais como substâncias de ligação, ingredientes inertes, e substâncias de controle de fluxo que juntas auxiliam na formação dos péletes de substâncias ativas granuladas. O núcleo pode compreender uma ou mais substâncias ativas, geralmente em uma forma sólida, e devem ser firmes o bastante de modo a permanecerem intactos durante as fases seguintes de processamento, especialmente durante as operações de revestimento.

O termo “substância ativa” aqui a seguir refere-se a, por exemplo, aminoácidos, vitaminas, enzimas, nutrientes tais como proteínas e carboidratos, micro-organismos probióticos, alimentos prebióticos, sais minerais, misturas de ácidos tais como, por exemplo, ácido láctico, ácido fumárico, ácido cítrico e ácido málico, colina, e derivados de colina. Estas substâncias ativas podem ser usadas individualmente, ou misturadas juntas em razões em peso variantes.

Especificamente, as substâncias ativas podem incluir, por exemplo: aminoácidos tais como lisina, metionina, triptofano, arginina, histidina, isoleucina, leucina, fenilalanina, valina, e treonina; derivados de aminoácido tais como N-acilaminoácido e sal de cálcio de N-hidróxi-metilmctionina, sulfato de lisina, e cloridrato de lisina; compostos homólogos de hidróxi de aminoácidos tais como ácido 2-hidróxi-4-metilmercaptobutírico e sais dos mesmos; pós de nutrientes naturais tais como pós de grãos, e

penas; proteínas tais como caseína, proteínas de milho, e proteínas de batata; carboidratos tais como amido, açúcar de cana, e glicose; vitaminas e substâncias tendo uma função similar tais como vitamina A, acetato de vitamina A, palmitato de vitamina A, vitaminas B, tiamina, cloridrato de tiamina, riboflavina, ácido nicotínico, amida de ácido nicotínico, pantotenato de cálcio, pantotenato de colina, cloridrato de piridoxina, cloreto de colina, cianocobalamina, biotina, ácido fólico, ácido p-aminobenzoico, vitamina D<sub>2</sub>, vitamina D<sub>3</sub>, e vitamina E; antibióticos tais como antibióticos tetracíclicos, antibióticos amino glicosídeo, antibióticos do tipo macrolídeo, antibióticos do tipo poliéter; inseticidas tais como negfon; vermicidas tais como piperazina; e hormônios tais como estrogênio, estibestrol, hexestrol, tioproteína, e goitrogen.

Várias substâncias ativas têm sido identificadas as quais auxiliam no aperfeiçoamento da produção de leite e carne de animais ruminantes, incluindo os aminoácidos lisina e metionina. Quando usados nos suplementos dietéticos, diferentes formas de sais de tais aminoácidos podem ser utilizadas para fornecer o aminoácido desejado. Por exemplo, lisina pode ser na forma de cloridrato de lisina ou sulfato de lisina. Além disso, as características físicas do sal de aminoácido podem variar de muito fino, quase em pó, a grânulos grandes. Portanto, as propriedades químicas e físicas do produto final, e assim sua capacidade de desviar do rúmen e de ser eficazmente utilizado pelo animal ruminante, são diretamente relacionadas ao sal de aminoácido selecionado.

Uma forma preferida de lisina é um sulfato de L-lisina granulado tendo os atributos a seguir. O tamanho de partícula está preferivelmente na faixa de 0,3 mm a cerca de 3,0 mm, e mais preferivelmente está na faixa de 0,3 mm a cerca de 1,0 mm, ou na faixa de 1,0 mm a cerca de 2,0 mm, ou na faixa de 2,0 mm a cerca de 3,0 mm, ou na faixa de 0,3 mm a cerca de 1,6 mm, ou na faixa de 0,8 mm a cerca de 1,2 mm.

O sulfato de L-lisina granulado pode ser triado antes de ser revestido para eliminar partículas finas. Em algumas modalidades, pelo menos 99%, ou pelo menos 99,2%, ou pelo menos 99,4%, ou pelo menos

99,6%, ou pelo menos 99,8%, ou 100% das partículas do sulfato de L-lisina granulado têm um tamanho de partícula maior do que 300 µm, ou 400 µm, ou 500 µm, ou 600 µm, ou 700 µm, ou 800 µm.

O ensaio de lisina pode ser 50% no mínimo. O teor de umidade 5 pode ser de 5% no máximo, e a densidade de massa pode ser  $0,70 \pm 0,07$  grama/cm<sup>3</sup>. Tal produto de lisina é comercialmente disponível como BIOLIS® fabricado por Evonik Corporation.

Os materiais de revestimento para o revestimento de um núcleo contendo as substâncias ativas podem compreender um óleo vegetal que 10 seja pelo menos parcialmente hidrogenado. Exemplos de óleos vegetais adequados incluem óleo de palma, óleo de soja, óleo de semente de colza, óleo de algodão, e óleo de mamona.

O material de revestimento deve ter uma temperatura de fusão na faixa de 40°C a cerca de 80°C, tal como na faixa de 50°C a cerca de 15 60°C, ou na faixa de 60°C a cerca de 70°C, ou na faixa de 70°C a cerca de 80°C, ou na faixa de 55°C a cerca de 65°C, ou na faixa de 60°C a cerca de 75°C, para garantir que o revestimento sobre o produto final tenha uma superfície dura, dessa forma prevenindo a aglomeração do produto final, e também aumentar a estabilidade do produto no rúmen.

20 O óleo vegetal deve ser pelo menos parcialmente hidrogenado, ou pode ser totalmente hidrogenado. Em algumas modalidades, o óleo de soja totalmente hidrogenado é usado como um material de revestimento. Tal óleo de soja hidrogenado é comercialmente disponível como Óleo de soja Bunge Oil Flakes fabricado por Bunge, Ltd. Em algumas modalidades, o óleo 25 de semente de colza hidrogenado pode ser usado. Tal óleo de semente de colza hidrogenado é comercialmente disponível como AGRIPURE AP-660 fabricado por Cargil (Hamburg, Alemanha).

O material de revestimento pode ainda compreender um agente de modificação, tal como, por exemplo, ácido esteárico, ácido oleico, lecitina, 30 óleo de palma, e combinações dos mesmos. A quantidade de agente de modificação pode ser na faixa de 0,5 % em peso a cerca de 10 % em peso do produto final, tal como de 0,5 % em peso a cerca de 5 % em peso, ou de

4 % em peso a cerca de 10 % em peso, ou de 3 % em peso a cerca de 7 % em peso, ou de 2 % em peso a cerca de 4 % em peso. A razão da porcentagem em peso do agente de modificação em óleo vegetal pode ser na faixa de 2:98 a cerca de 20:80, tal como de 5:95 a cerca de 10:90.

5 O núcleo contendo a substância ativa deve ser revestido com uma quantidade suficiente de material de revestimento para revestir completamente o núcleo e para obter a taxa de desvio do rúmen de pelo menos 50%, tal como pelo menos 55%, ou pelo menos 60%, ou pelo menos 65%. Em outras modalidades, o núcleo é revestido com uma quantidade suficiente de material de revestimento para obter a taxa de desvio do rúmen de pelo menos 70%, tal como pelo menos 75%, ou pelo menos 80%, ou pelo menos 85%. Em ainda outras modalidades, o núcleo é revestido com uma quantidade suficiente de material de revestimento para obter a taxa de desvio do rúmen de pelo menos 88%, tal como pelo menos 90%, ou pelo menos 93%, ou pelo menos 96%. A "taxa de desvio do rúmen" é a percentagem da substância ativa contida no núcleo antes da entrada no rúmen que permanece no núcleo mediante a saída do rúmen.

A razão da porcentagem em peso do núcleo em relação ao material de revestimento pode ser em uma faixa de 50:50 a cerca de 70:30, 20 tal como 50:50, ou 55:45, ou 60:40, ou 65:35, ou 70:30. Em outras modalidades, a razão da porcentagem em peso do núcleo em relação ao material de revestimento está em uma faixa de 70:30 a cerca de 90:10, tal como 75:25, ou 80:20, ou 85:15, ou 90:10.

A  $d_{50}$  do produto final pode ser na faixa de 300  $\mu\text{m}$  a cerca de 25 5.000  $\mu\text{m}$ . Em algumas modalidades, a  $d_{50}$  do produto final pode ser na faixa de 600  $\mu\text{m}$  a cerca de 3.000  $\mu\text{m}$ , ou de 800  $\mu\text{m}$  a cerca de 1.900  $\mu\text{m}$ , ou de 1.000  $\mu\text{m}$  a cerca de 1.500  $\mu\text{m}$ , de 1.200  $\mu\text{m}$  a cerca de 1.800  $\mu\text{m}$ .

Além de exibir a taxa de desvio do rúmen de pelo menos 50%, o material de núcleo revestido deve também exibir uma taxa suficiente de 30 digestibilidade intestinal. A "taxa de digestibilidade intestinal" é a percentagem da substância ativa passada do rúmen que é digerida e absorvida no abomaso e subsequente trato digestivo. A taxa de digestibilidade intestinal

5 pode ser de pelo menos 70%, ou pelo menos 75%, ou pelo menos 80%, ou pelo menos 85%, tal como na faixa de 70% a cerca de 100%, ou tal como na faixa de 80% a cerca de 90%, ou na faixa de 90% a cerca de 100%, ou na faixa de 85% a cerca de 96%, ou na faixa de 89% a cerca de 95%, ou na faixa de 93% a cerca de 99%, ou na faixa de 75% a cerca de 95%.

10 O núcleo pode ser revestido pelo revestimento por spray, cobertura, revestimento de leito fluido, revestimento por derramamento contínuo, ou qualquer outro método conhecido por aqueles versados na técnica. Isto pode ser feito em uma batelada ou em um processo contínuo. O núcleo 15 pode ser revestido com uma camada única do material de revestimento aplicado em uma aplicação de revestimento única, ou o núcleo pode ser revestido com camadas múltiplas de material de revestimento, tais como, por exemplo, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, ou mais camadas. Cada que circunda o núcleo pode compreender independentemente o mesmo material de revestimento ou materiais de revestimento diferentes.

Ao revestir o núcleo, o material de revestimento é formado misturando junto o óleo vegetal, o agente de emulsão, e quaisquer outros aditivos desejados. O material de revestimento pode a seguir ser aquecido até uma temperatura acima do seu ponto de fusão de modo que o material 20 de revestimento esteja em um estado líquido quando ele for aplicado ao núcleo. O material de revestimento pode ser aquecido até uma temperatura na faixa de 50°C a cerca de 200°C, tal como na faixa de 70°C a cerca de 110°C, ou na faixa de 90°C a cerca de 120°C, ou na faixa de 100°C a cerca de 160°C, ou na faixa de 80°C a cerca de 105°C, ou na faixa de 100°C a 25 cerca de 150°C. Após a aplicação do material de revestimento líquido ao núcleo, o núcleo revestido é deixado resfriar de modo que o material de revestimento solidifique formando uma camada sólida que circunda o núcleo. Este processo pode ser repetido uma ou mais vezes para produzir camadas múltiplas de materiais de revestimento que circundam o núcleo.

30 Se camadas consecutivas do mesmo material de revestimento forem aplicadas ao núcleo como descrito acima, as camadas individuais podem não ser distinguíveis no produto final. No entanto, o processo de

multicamadas descrito acima confere características estruturais distintas ao produto final quando comparados a um produto circundado por uma camada única do mesmo material de revestimento tendo a mesma espessura que a do revestimento do produto de multicamadas. Enquanto o material de revestimento líquido é deixado resfriar e solidificar em uma camada sólida, defeitos tais como microfissuras, rachaduras, e poros podem se formar na camada. Estes defeitos podem criar caminhos para o ambiente ruminante para acessar e iniciar a degradação do núcleo. Embora quaisquer camadas adicionais possam exibir tais defeitos, os defeitos em uma camada podem ser desviados por áreas sem defeito em uma camada do revestimento acima ou abaixo e em contato direto com a dita uma camada. Assim, pela aplicação de camadas múltiplas de material de revestimento ao núcleo, onde cada camada é deixada resfriar e solidificar antes da formação da próxima camada, o número de defeitos que aparecem continuamente ou criam um caminho a partir da superfície exterior da camada mais extrema até o núcleo diminui.

O uso de um agente de modificação ajuda a limitar, reduzir, e/ou ainda selar as microfissuras, rachaduras, e poros que podem se formar na camada. Não para estar ligado por teoria científica, acredita-se que as propriedades químicas e o tamanho relativamente menor das moléculas do agente de modificação permite que o agente de modificação permeie dentro das microfissuras, rachaduras, e poros e vede estes defeitos mediante a solidificação.

O número e o tamanho dos defeitos em uma camada podem variar dependendo do tamanho do núcleo, materiais de revestimento, do processo de revestimento, e dos parâmetros do processo utilizados para fazer o núcleo revestido. Como tal, o número de camadas e a espessura de cada camada necessária para obter uma taxa de desvio desejada e a taxa de digestibilidade intestinal podem variar dependendo das variáveis selecionadas.

Os materiais de núcleo revestidos podem a seguir ser usados como um suplemento alimentar ou aditivo alimentar. Quantidades apropriadas dos grânulos revestidos são adicionadas ao alimento para ruminante,

por exemplo, pela mistura. Quando o suplemento alimentar é ingerido pelo ruminante, a substância fisiologicamente ativa é estavelmente liberada ao passar pelo rúmen em uma taxa de desvio como descrito acima, tal que a percentagem da substância ativa é liberada ao passar pelo rúmen para a digestão e é absorvida no sistema ruminante. No caso do sulfato de lisina, o suplemento alimentar deve ser adicionado ao alimento do ruminante em uma quantidade que forneceria entre cerca de 5 a 120 gramas de sulfato de lisina por cabeça de gado por dia.

#### EXEMPLOS

##### 10 Exemplo Comparativo

300 gramas de sulfato de lisina granulado (BIOLIS®, Evonik Corporation), tendo grânulos com um diâmetro em uma faixa de 0,3 mm a 1,6 mm, foram aquecidos pela condução térmica até 43°C, e a seguir transferidos para um misturador de baixo cisalhamento. Enquanto agitando o sulfato de lisina sob baixo cisalhamento, 33% em volume de uma quantidade pré-medida de óleo de soja hidrogenado ( $T_m = 49^\circ\text{C}$ ) aquecido até uma temperatura de 93°C foram adicionados ao misturador usando revestimento por derramamento contínuo do sulfato de lisina. No agente de modificação foi usado. O produto, enquanto sob agitação, foi deixado esfriar até 43°C. Óleo de soja hidrogenado aquecido até uma temperatura de 93°C foi novamente adicionado até a temperatura do produto alcançar 54°C, e o produto, enquanto sob agitação, foi deixado esfriar até 43°C. O ciclo foi repetido uma vez mais, completando uma adição de óleo de soja hidrogenado. O produto final tinha 60% de núcleo até 40% de revestimento em peso.

Aproximadamente 10 gramas do produto de teste foi pesado em sacos de 5cm x 10cm (ANKOM #510, tamanho de poro médio de  $50 \pm 15$  mícrons). Cada saco foi selado a quente duas vezes. Um total de 5 sacos do produto de teste foi preparado para cada vaca mais 4 sacos vazios. Cada saco foi marcado sequencialmente usando um marcador permanente e informações de amostra foram gravadas em folhas de log. Uma amostra do produto de teste foi coletada e analisada quanto ao teor de matéria seca inicial (DM) e nitrogênio (N).

Imediatamente antes da inserção no rúmen, os sacos foram encharcados em água a 39°C por aproximadamente cinco minutos para umidificar o material de teste. Os sacos foram a seguir inseridos no rúmen das três vacas lactantes Holstein anteriormente fixado com cânula de rúmen.

- 5 Após um período de incubação de 16 horas, os sacos foram removidos do rúmen e imediatamente colocados em água gelada até eles serem lavados três vezes. Após a lavagem, os sacos foram secos a 45°C. Uma vez seco, cada saco e seu resíduo foi pesado para determinar a quantidade de matéria seca (DM) que escapa da degradação ruminante usando a fórmula a seguir:

$$10 \quad \% \text{ de escape de DM} = \frac{\text{massa de amostra inicial} / \text{massa de resíduo da amostra}}{\text{massa de amostra inicial}} \times 100$$

A taxa de desvio do rúmen (% de escape de DM) para o produto de teste foi de 75,17% com um desvio padrão de 2,85%.

#### Exemplos 1-21

- 15 300 quilogramas de sulfato de lisina granulado (BIOLIS®, Evonik Corporation), tendo grânulos com um diâmetro de 0,3 mm a 1,6 mm, foram adicionados a uma câmara de revestimento fluidizado e aquecidos até 43°C pelo uso de ar aquecido a 53°C para fluidizar a câmara. Uma vez que o substrato alcançou a temperatura inicial do produto, o material de revestimento (óleo de semente de colza hidrogenado com um agente de modificação) preaquecido até a temperatura de 120°C foi aplicado através do fluxo de ar aquecido para alcançar uma temperatura de aplicação do produto de 55°C. Como para o projeto de um revestidor fluidizado, o material se move dentro e fora do fluxo de revestimento, construindo camadas sucessivas.
- 20 25 A temperatura de entrada de ar foi controlada para manter uma temperatura de produto de 55°C até toda a mistura de revestimento pré-pesada ser aplicada para alcançar um núcleo de 55% até um revestimento de 45% em peso. O produto foi a seguir resfriado na câmara de ar fluidizado até a temperatura ambiente (25°C) ser alcançada.

30 A tabela 1 abaixo resume os dados obtidos para os exemplos 1–21 que foram produzidos usando um processo de leito fluido similar àquele descrito acima. Estes exemplos ilustram uma variedade de diferentes

combinações de parâmetros de produto.

Tabela 1.

Exemplo	% em peso de Sulfato de lisina	% em peso de Óleo de semente de colza Hidrogenado	% em peso de Agente (s) de modificação	% de Sulfato de lisina > X µm	d <sub>50</sub> de Produto final (µm)
1	60%	36%	4% de ácido esteárico	100% > 600 µm	1387
2	60%	36%	4% de ácido esteárico	99,9% > 600 µm	1369
3	60%	36%	4% de ácido esteárico	99,8% > 800 µm	1417
4	60%	36%	4% de ácido esteárico	99,9% > 600 µm	1060
5	60%	36%	4% de ácido oleico	100% > 600 µm	1356
6	60%	38%	2% de lecitina	100% > 600 µm	1353
7	60%	38%	2% de lecitina	99,9% > 600 µm	1346
8	60%	38%	2% de ácido oleico	99,2% > 800 µm	1420
9	60%	38%	2% de ácido oleico	99,2% > 800 µm	1440
10	60%	36%	2% de ácido esteárico 2% de lecitina	99,9% > 600 µm	1325
11	60%	36%	2% de ácido oleico 2% de lecitina	100% > 600 µm	1519
12	60%	36%	2% de ácido esteárico 2% de ácido oleico	99,4% > 800 µm	1431
13	50%	50%	n/a	99,5% > 800 µm	1457
14	55%	45%	n/a	100% > 600 µm	1347
15	55%	43%	2% de lecitina	99,9% > 600 µm	1343
16	55%	43%	2% de ácido oleico	99,6% > 800 µm	1416
17	60%	38%	2% de óleo de palma	100% > 600 µm	1384
18	60%	36%	4% de óleo de palma	100% > 600 µm	1400
19	60%	36%	2% de óleo de palma 2% de lecitina	100% > 600 µm	1292
20	60%	36%	2% de óleo de palma 2% de ácido esteárico	99,9% > 600 µm	1259
21	55%	41%	4% de ácido esteárico	99,9% > 600 µm	1297

Exemplos 22–31

Os exemplos 22–31 foram produzidos usando um processo de leito fluido substancialmente similar àquele descrito acima. Cada um dos exemplos 22–31 foi analisado quanto à taxa de desvio do rúmen (% de escape de DM). Alguns dos produtos exemplares foram ainda analisados para determinar a taxa de digestibilidade intestinal de nitrogênio por um teste de digestibilidade *in vivo*.

**Protocolo de Desvio de Rúmen**

Aproximadamente 20 gramas do produto de teste foram pesados dentro de sacos de 5cm x 10cm (ANKOM #510, tamanho de poro médio de 50±15 micrões). Cada saco foi selado a quente duas vezes. Um total de 20 sacos do produto de teste foi preparado para cada vaca mais 2 sacos vazios. Cada saco foi marcado sequencialmente usando um marcador permanente e informações de amostra foram gravadas em folhas log. Uma amostra do produto de teste foi coletada e analisada quanto ao teor de matéria seca inicial (DM), nitrogênio (N), e lisina.

Imediatamente antes da inserção no rúmen, os sacos foram encharcados em água a 39°C por aproximadamente cinco minutos para umidificar o material de teste. Os sacos foram a seguir inseridos no rúmen de vagas lactantes Holstein anteriormente fixado com uma cânula de rúmen. Após um período de incubação de 16 horas, os sacos foram removidos do rúmen e imediatamente colocados na água gelada até eles serem lavados três vezes. Após a lavagem, os sacos foram secos a 45°C. Uma vez seco, cada saco e seu resíduo foi pesado para determinar a quantidade de matéria seca (DM) que escapa da degradação ruminante usando a fórmula a seguir:

$$\% \text{ de escape de DM} = \frac{\text{massa de amostra inicial} / \text{massa de resíduo da amostra}}{\text{massa de amostra inicial}} \times 100$$

**Protocolo de Teste de Digestibilidade Intestinal In Vivo**

A taxa de digestibilidade intestinal foi determinada por um teste de digestibilidade *in vivo*. O protocolo é baseado nas recomendações publicadas no National Research Council, "Nutrient requirements of dairy cattle," 7th rev. ed., Natl. Acad. Sci., Washington, DC., (2001), incorporado aqui a

seguir por referência. Aproximadamente 0,8 grama do produto de teste foi pesado em sacos de 5cm x 10cm (ANKOM #510, tamanho de poro médio de 50±15 mícrons). Cada saco foi selado a quente duas vezes. Os sacos foram encharcados em solução de pepsina/HCl (100 mg de pepsina por litro de HCl a 0,01 N) por 2 horas a 39°C em um banho de água em agitação. Suficiente HCl foi adicionado para diminuir a pH até 2.4. Os sacos foram enxaguados com água destilada e mantidos a -18°C até a introdução no duodeno. Um saco foi inserido na cânula duodenal todo dia a cada 15 minutos após uma refeição por um período de 3 horas (total de 12 sacos por vaca). Os sacos foram coletados a partir das fezes de 8 a 20 horas após a inserção inicial. Mediante a recuperação, os sacos foram enxaguados sob água da torneira até a água de enxágüe estar clara. Os sacos foram secos a 55°C e o resíduo agrupado por replicata e o produto de teste foi analisado quanto ao teor de DM e N. A digestibilidade intestinal aparente do nitrogênio foi calculada usando a fórmula a seguir:

$$\% \text{ de digestibilidade de N} = \frac{\text{massa da amostra inicial de N} / \text{massa de resíduo N}}{\text{massa da amostra inicial de N}} \times 100$$

Os resultados para os exemplos 22–31 são resumidos na tabela 2.

Tabela 2.

Exemplo	% em peso de Sulfato de lisina	% em peso de HVO	Tipo de HVO	% em peso de ácido oleico	% em peso de Ácido esteárico	% de Escape Ruminal DM	% de digestibilidade Duodenal de N
22	60	36	Óleo de soja	4	0	91,9	n/a
23	60	36	Óleo de soja	4	0	88,2	88,7
24	60	36	Óleo de soja	4	0	92,0	96,8
25	55	43	Óleo de soja	2	0	87,5	n/a
26	60	36	Óleo de soja	2	2	91,2	n/a
27	60	36	Semente de colza	0	4	87,4	74,5
28	55	41	Semente de colza	0	4	97,8	n/a
29	55	43	Semente de colza	2	0	92,2	99,0

30	60	36	Semente de colza	4	0	78,5	
31	60	36	Semente de colza	2	2	88,6	98,9

Será apreciado que várias das características e funções descritas acima e outras, ou alternativas das mesmas, podem ser desejavelmente combinadas em muitos outros sistemas e aplicações diferentes. Também, alternativas, modificações, variações, ou aperfeiçoamentos apresentados de 5 várias formas imprevistas ou antecipadas podem ser subsequentemente feitos por aqueles versados na técnica e são também destinados a serem abrangidos pelas reivindicações a seguir.

## REIVINDICAÇÕES

1. Composição alimentar para ruminante, caracterizada pelo fato de que compreende:

a) um núcleo granulado compreendendo sulfato de L-lisina, o núcleo granulado tendo um tamanho granular de 0,8 mm a 1,6 mm; e

5 b) um revestimento compreendendo duas ou mais camadas de um material de revestimento que promove o desvio do rúmen e mantém a digestibilidade intestinal alta circundando o núcleo, o material de revestimento incluindo:

10 c) um óleo de soja hidrogenado, e

d) um agente de modificação selecionado do grupo que consiste em ácido esteárico e ácido oleico em uma quantidade de 2% em peso ou 4% em peso de um produto final em peso;

em que:

15 o material de revestimento tem uma temperatura de fusão em uma faixa de 50°C a 80°C;

a razão da porcentagem em peso do material de núcleo para material de revestimento é de 50:50 a 70:30; e

20 as camadas de material de revestimento provocam que a composição exiba uma taxa de desvio no rúmen de pelo menos 85% e uma taxa de digestibilidade intestinal de pelo menos 85%.

2. Composição de acordo com a reivindicação 1, caracterizada pelo fato de que o material de revestimento é ácido oleico.

25 3. Composição de acordo com a reivindicação 1 ou 2, caracterizada pelo fato de que o agente de modificação é uma mistura de ácido oleico e ácido esteárico.

4. Composição de acordo com qualquer uma das reivindicações

1 a 3, caracterizada pelo fato de que a razão da porcentagem em peso do material de núcleo para o material de revestimento é de 55:45 ou 60:40.

5. Composição de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 4, caracterizada pelo fato de que o agente de modificação está presente em uma 5 quantidade de 4% em peso de um produto final em peso.

6. Método de suplementação da dieta de um ruminante com lisina, caracterizado pelo fato de que compreende fornecer ao ruminante uma composição alimentar para ruminante como definida em qualquer uma das reivindicações 1 a 5.

10 7. Método de acordo com a reivindicação 6, caracterizado pelo fato de que a razão da porcentagem em peso de material de núcleo para material de revestimento é 60:40.

8. Método de acordo com a reivindicação 7, caracterizado pelo fato de que o agente de modificação está presente em uma quantidade de 2% em 15 peso de um produto final em peso.

9. Método de produção de uma composição alimentar para ruminante, caracterizado pelo fato de que compreende:

obter um núcleo compreendendo sulfato de L-lisina tendo um tamanho granular de 0,8 mm a 1,6 mm;

20 a) revestir o núcleo com duas ou mais camadas contínuas de um material de revestimento que promove o desvio do rúmen e mantém a digestibilidade intestinal alta, o material de revestimento incluindo:

b) óleo de soja hidrogenado líquido, o material de revestimento tendo uma temperatura de fusão em uma faixa de 50°C a 80°C; e

25 c) um agente de modificação selecionado do grupo que consiste em ácido esteárico e ácido oleico em uma quantidade de 2% em peso ou 4% em peso de um produto final em peso;

d) deixar a camada de material de revestimento solidificar para obter

um núcleo revestido; e revestir o núcleo revestido com uma ou mais camadas adicionais do material de revestimento, em que cada camada do material de revestimento é deixada se solidificar antes da adição de uma próxima camada de material de revestimento;

5                  em que:

a razão da porcentagem em peso de material de núcleo para material de revestimento é de 50:50 a 70:30; e

10                as camadas do material de revestimento provocam que a composição exiba uma taxa de desvio no rúmen de pelo menos 85% e uma taxa de digestibilidade intestinal de pelo menos 85%.

10. Método de acordo com a reivindicação 9, caracterizado pelo fato de que o núcleo é revestido em um processo em batelada ou em um processo contínuo.

11. Método de acordo com a reivindicação 9 ou 10, caracterizado 15 pelo fato de que o agente de modificação é ácido oleico.

12. Método de acordo com a reivindicação 10 ou 11, caracterizado pelo fato de que o agente de modificação é ácido esteárico.

13. Método de acordo com a reivindicação 10 ou 11, caracterizado pelo fato de que o agente de modificação é uma mistura de ácido oleico.

20                14. Método de acordo com qualquer uma das reivindicações 10 a 13, caracterizado pelo fato de que a razão da porcentagem em peso de material de núcleo para material de revestimento é 55:45.

25                15. Método de acordo com qualquer uma das reivindicações 10 a 13, caracterizado pelo fato de que a razão da porcentagem em peso de material de núcleo para material de revestimento é 60:40.