

# **ETUDE DES CONDITIONS FAVORISANT LE MOTTAGE ET LE DEMOTTAGE DU SUCRE EN SILO PILOTE**

**Barbara Rogé , Mohamed Mathlouthi\***

\*Laboratoire de Chimie Physique Industrielle, Université de Reims Champagne- Ardenne B.P. 1039-51687 Reims Cedex 2.

## **Résumé :**

Le stockage et la maturation du sucre en silo dépendent essentiellement de la qualité de l'air insufflé, notamment de la constance de son humidité relative et de sa température. La réversibilité du mottage et les moyens d'y parvenir sont étudiés en silo pilote. Afin de compléter l'étude, des expériences de mottage sont réalisées au laboratoire ce qui permet de varier les conditions de température, d'hygrométrie ou de qualité de sucre. Les essais de démottage du sucre ont abouti. Un balayage d'air humide (environ 50 % d'HR) sur du sucre partiellement pris en masse permet la fluidisation du contenu du silo et le retour progressif à une tension de cisaillement observée pour du sucre non motté. Au laboratoire, si la granulométrie est inférieure à 400  $\mu\text{m}$ , le sucre adsorbe rapidement la vapeur d'eau à 44 % d'HR et motte dès 58% d'HR. Si on ajoute 10 et 20 % de fines à un sucre de référence, il adsorbe autant d'eau que s'il y avait 100% de fines (< 250  $\mu\text{m}$ ).

**Mots clés :** Sucre, stockage, mottage, démottage, sorption, silo pilote.

## ***FACTORS AFFECTING CAKING AND UNCAKING OF SUGAR CRYSTALS IN A PILOT SILO***

### **Abstract :**

The storage and the maturation of sugar in silo depend primarily on the quality of the air especially the constancy of relative humidity and temperature. The quality of stored sugar also plays a significant role. The reversibility of caking and the measures used to obtain it are studied in a pilot silo. In order to take into account all the informations related to caking, a systematic study of the conditions promoting it was performed. The temperature was varied from 35 °C to 5°C and relative humidity from 85 % to 44 %. This range makes it possible to approach the conditions of storage in the factory.

The shear stress of caked sugar is measurable using a shearmeter. Moreover, the tests of uncaking of sugars were successful. A short blowing with humid air (approximately 50 % of HRE) allows the fluidisation of the contents of the silo and the progressive return of the shear stress at 4 kPa. Average shear stress for a caked sugar is approximately 13 kPa.

At the laboratory, for each grain size, air temperature and relative humidity imposed corresponds a caking index. If grain size is lower than 400 µm, sugar increase in moisture content appears at 44 % relative humidity, and it cakes at 58%. If we add 10 and 20 % of fines to sugar, it cakes and adsorbs as much water as sugar of grain size below 250 µm. The presence of fines in sugar increases cohesion between the grains and also their water content. Moreover, analysis carried out on sugars crusher-run reveals the importance played by the coefficient of variation, CV. Indeed, the more CV is high, the more heterogeneity of sugar increases, which favours caking of the sample.

Curves of water vapor sorption are also carried out in order to study the influence of temperature and quality of sugars.

**Key words** : Sucrose, storage, caking, uncaking, sorption, pilot silo.

## **INTRODUCTION :**

L'eau est un constituant majeur dans les produits alimentaires même à l'état de traces comme c'est le cas pour le sucre cristallisé. Les interactions entre l'eau et le sucre ont une importance du point de vue des propriétés structurales du sucre mais également sur les propriétés mécaniques de ce dernier (densité, compressibilité, écoulement). Le conditionnement du sucre en vrac est par conséquent délicat puisqu'il est dépendant des variations d'humidité.

Dans les cellules de stockage, l'eau présente autour du cristal doit être évacuée afin d'éviter les problèmes courants tels que l'agglomération des cristaux, la croissance de micro-organismes ou encore les migrations d'eau. Cette période d'évacuation d'eau est dite phase de "*maturation*". C'est dans l'optique de comprendre les phénomènes physico-chimiques liés à l'apparition du mottage du sucre que nous étudions les conditions le favorisant (Humidité relative (HR), température, qualité du sucre) ainsi que les conditions de réversibilité de ce processus.

Au cours des campagnes sucrières 1999 et 2000 du sucre frais et non mûré est prélevé avant son stockage en silo. On mène conjointement les expériences en silo pilote et au laboratoire. L'étude en silo pilote permet de travailler sur une masse de sucre représentative. L'installation dont nous disposons permet d'obtenir des conditions de soufflage d'air variables en débit et en humidité. Le but de ces expériences étant d'étudier la maturation, la réversibilité du mottage et les moyens d'y parvenir. La mesure de la

tension de cisaillement, la pose de capteur autonomes enregistrant l'humidité relative d'équilibre du sucre ou encore l'emploi d'une caméra microscope permettent d'affiner l'observation visuelle des cristaux au cours de l'expérience et de tirer des conclusions.

L'étude en laboratoire permet quant à elle, d'étudier le mottage de différentes qualités de sucre et ceci sur un large domaine de températures et d'humidités relatives expérimentées. On étudie en outre, l'évolution de la sorption de vapeur d'eau par du sucre en fonction de la température ou de l'état d'agglomération d'un sucre motté.

### **MATERIEL ET METHODES**

#### Sucres analysés :

Pour étudier les conditions de mottage du sucre, nous choisissons des qualités de sucre très variées :

- ❖ Différents refus de tamis : Fond (< 250  $\mu\text{m}$ ), R250, R400, R500, R630, R800 (en  $\mu\text{m}$ ).
- ❖ Nous réalisons un sucre de référence composé exclusivement d'un sucre tout-venant de granulométrie supérieures à 250  $\mu\text{m}$ . On ajoute à ce sucre de référence 5 -10 ou 20 % de fines (<250  $\mu\text{m}$ ).

Les courbes isothermes de sorption de vapeur d'eau sont effectuées en premier lieu sur du sucre prélevé sur un refus de 630  $\mu\text{m}$  et en second lieu sur un sucre motté.

L'étude en silo pilote est réalisée avec du sucre provenant directement d'une usine. Il est prélevé encore tiède (25°C à 30 °C) à l'entrée du silo pour être introduit dans le silo pilote. La granulométrie du sucre tout-venant étudié dans ces expériences de démottage est toujours relativement constante ( $OM \cong 0.57$ ,  $CV \cong 32$ ).

### Isothermes de sorption de vapeur d'eau

L'échantillon de sucre est placé dans l'enceinte de mesure d'un hygromètre de marque Thermoconstanter Novasina (Suisse). L'humidité relative est fixée à l'aide d'une solution saline saturée placée sous l'échantillon. Le temps nécessaire à l'équilibre de pression de vapeur d'eau (échantillon -air) est très court (environ 2 jours) car le volume d'air présent entre le capteur de mesure et l'échantillon est faible.

Les échantillons testés sont constitués de sucre de granulométrie moyenne. Le but dans cette première série d'expériences étant d'évaluer l'impact de la baisse de température sur la sorption du sucre. On utilise, d'autre part du sucre motté afin d'étudier son comportement lorsque l'humidité relative augmente. Il s'agit de déterminer si le sucre motté possède le même profil d'adsorption que le sucre non motté. Les traitements imposés aux échantillons sont les suivant :

Du sucre (refus de 630 $\mu$ m) est conditionné sous 4 humidités relatives différentes, pendant 15 jours. On le sèche ensuite en présence de P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> pendant 15 jours. Les échantillons sont à ce stade mottés en bloc. On réalise ensuite une courbe de sorption sur ces quatre sucres à température constante égale à 20°C.

### Etude du mottage en laboratoire

Il s'agit d'imposer une humidité relative et une température constante sur différentes qualités de sucre et d'étudier leur comportement. L'équilibre est atteint en 4 jours de stockage dans des enceintes équilibrées en humidité relative grâce à des solutions salines saturées. Selon la solution saline choisie, l'humidité relative d'équilibre (HRE) varie de 44 à 85 %. Les températures sont obtenues en plaçant les enceintes contenant les échantillons dans une étuve climatique.

Les températures expérimentées varient de 35 °C à 5°C, et les humidité relative de 85 % à 44 %. Cette gamme de travail permet d'être proche des conditions de stockage en silo de l'usine.

#### Analyse d'image

A l'issue de l'expérience l'analyse sous caméra microscope ainsi que la teneur en eau des échantillons nous permettent de préciser à quel stade la poudre observée se situe (poudre libre, humide, mottée, liquéfiée) (Gutman (1996)).

La caméra dont nous disposons permet de fort grossissement (250 fois) ce qui s'avère utile dans l'observation des cristaux et notamment l'observation de l'eau entre les particules.

#### Démottage en silo pilote

De l'air déshydraté (1) est insufflé à travers une enceinte (2) dans laquelle on vaporise de l'eau à l'aide d'une buse reliée à un compresseur (3). A chaque pression appliquée sur cette buse correspond une humidité relative de l'air insufflé. Le débit d'air d'entrée est réglable par ouverture- fermeture d'une vanne à la base du silo (4). Le contrôle du débit est effectué à la sortie du silo (5) à l'aide d'un anémomètre. Les parois du silo sont recouvertes d'un isolant à base de carton et de polystyrène (Figure 1).

La quantité de sucre introduite dans notre silo est de 50 kg. Des capteurs d'humidité et de température sont placés dans le silo et dans la gaine d'arrivée de l'air. Un scissomètre permet de suivre l'évolution de la tension de cisaillement au cours de l'expérience. Les tensions mesurées s'expriment en kPa. Cette technique de mesure est purement comparative. Le débit d'air est le plus proche possible de celui employé dans les usines, soit environ 0.03 m<sup>3</sup>/h pour 50 kg de sucre. Dans le silo pilote, Il faut 1h 00 pour que le sucre s'équilibre avec l'humidité de l'air qui l'entoure.

## **RESULTATS ET DISCUSSION**

### Etude du mottage en laboratoire

Les résultats sont présentés sous la forme d'histogrammes en trois dimensions. L'axe des X représente l'humidité relative variant de 85 à 44 % d'HRE. Sur l'axe des Y est représentée la température, elle varie de 35 à 5 °C et enfin sur l'axe des Z, le degré de mottage. Le stade A est le stade pendulaire, la poudre est libre. L'état B est le stade funiculaire, la poudre s'humidifie. L'état C ou capillaire, la poudre motte. Pour finir l'état D ou Drop, la poudre s'humidifie jusqu'à sa dissolution. La figure 2 illustre les différents états de la poudre.

La carte de mottage d'un sucre prélevé sur le refus de 800 µm (Figure 3 a), nous indique que le sucre reste stable jusqu'environ 82 % d'humidité relative sur toute la gamme de température.

Les refus de 500 et 630 µm (Figure 3 b et 3c) s'humidifient dès 75 % d'humidité relative de l'air. Cependant, le mottage complet de l'échantillon n'est obtenu que pour 82 %. On remarque que pour ces deux refus le sucre s'humidifie plus rapidement à partir de 20°C. L'humidification a pour conséquence l'augmentation de l'angle de friabilité du sucre soit, une baisse générale de sa fluidité (Rogé & Mathlouthi (2000)). La vidange d'un silo par exemple, serait plus difficile dans ces conditions.

Concernant le refus de 400µm (Figure 3d) pour une température inférieure à 20°C et à partir de 58 % d'HR, la fluidité du sucre est réduite. Cette remarque est d'autant plus justifiée pour les refus de 250µm et le fond du tamis (< 250 µm) (Figure 3e et 3f). Les sucres de granulométrie inférieure à 250µm sont instables sur toute la gamme de température et d'humidité relative. Les cristaux de petite taille offrent une plus grande surface d'échange et possèdent une couche

d'hydratation beaucoup moins structurée que les plus gros (Rogé & Mathlouthi (2000)). Par ailleurs, ces petits cristaux sont composés en grande partie de débris de gros cristaux et adsorbent l'eau très facilement. Les brisures ou les poussières de sucre se comportent comme du sucre amorphe.

Le tableau 1 présente la teneur en eau des différents refus de tamis en équilibre avec un air à 82 % d'humidité relative. Les teneurs en eau confirment les tendances observées précédemment. A une température donnée, plus le sucre est fin, plus il est sensible à l'humidité ambiante et plus il adsorbe d'eau. De plus, lorsque la température du sucre diminue, sa teneur en eau augmente. L'eau renforce la cohésion entre les grains et favorise le mottage.

Globalement, en dessous de 400  $\mu\text{m}$  le sucre est particulièrement instable puisqu'une humidité relative de 40 % suffit à l'hydratation des cristaux et au mottage de ces sucres. Pour les grains supérieurs à 400  $\mu\text{m}$ , ils conservent leur fluidité en dessous de 75 % d'humidité relative quelle que soit la température. Plus le cristal est gros, moins il adsorbe d'eau. Cette conclusion peut être applicable à un sucre tout-venant de la manière suivante : Plus l'ouverture moyenne du tout-venant est élevée, moins le sucre motte. Ceci a par ailleurs été vérifié par des expériences complémentaires.

Dans une 2<sup>ème</sup> série d'expériences, on se propose d'évaluer le rôle joué par les fines lors de la prise en masse du sucre. Nous réalisons un sucre de référence composé exclusivement d'un sucre tout-venant de granulométrie supérieure à 250  $\mu\text{m}$ . On additionne à ce sucre de référence 5 -10 et 20 % de fines, et on attribue comme précédemment un indice de mottage à chaque échantillon (Figure 4).

Le sucre de référence est stable jusque 82 % d'humidité relative d'équilibre, cependant pour une température inférieure à 20 °C cette limite descend à 75 %.

Avec 5 % de fines, le sucre motte à 82 % d'HRE. Avec encore une fois, un sucre sensible à la baisse de température. Il est important de remarquer que la présence de fines dans un sucre modifie son comportement. A partir de 10 % de fines, le sucre devient sensible à l'humidité de l'air qui l'entoure et manifeste une tendance prononcée au mottage et ceci quelle que soit l'humidité relative ou la température de l'air expérimenté. Ce comportement se traduit par une augmentation de la teneur en eau de l'échantillon.

Le tableau 2 présente les teneurs en eau à 82 % d'HRE, de ces 4 échantillons en fonction de la température. Comme précédemment, pour un échantillon donné la teneur en eau dans le produit augmente si la température diminue. Plus le sucre est froid, plus il adsorbe d'eau. par ailleurs, la teneur en eau dans le sucre augmente graduellement à mesure que l'on ajoute des fines. Les résultats obtenus à 10 et 20 % de fines et ceux à 100 % de fines dans les mêmes conditions de travail sont quasiment identiques. Un fort pourcentage de fines dans un sucre tout-venant rend le sucre aussi vulnérable que 100 % de fines (< 250  $\mu\text{m}$ ). C'est l'hétérogénéité de la masse de sucre qui est néfaste à son conditionnement. Ceci se traduit pour un sucre tout-venant de la manière suivante : plus le coefficient de variation CV du tout-venant est élevé et plus il motte. Cette conclusion est issue d'expériences complémentaires.

D'autre part, la présence de fines fragilise considérablement le sucre et augmente son aptitude à motter . Celles-ci favorisent en effet, la cohésion de la masse de sucre. La bibliographie (Ringard et al. (1988)) étaye cette hypothèse, puisqu'elle précise que la loi d'écoulement d'une poudre est dictée par la présence de fines. D'autre part les fines étant particulièrement instables en présence d'humidité, elles augmentent la capacité d'adsorption du sucre.

L'observation sous caméra microscope de cristaux provenant de l'industrie a révélé que certains d'entre eux sont tapissés d'une multitude de petits débris de sucre n'excédant pas 10  $\mu\text{m}$ . Si on met en suspension dans l'alcool ce genre de sucre on observe un décollement de ces fins cristaux qui sont observables sous microscope (figure 5). Cette multitude de fines augmente la surface d'échange du cristal principal et le fragilise.

### Courbe isotherme de sorption de vapeur d'eau par du sucre

#### *1. Variation de la température*

Les courbes de sorption représentées dans la figure 6 indiquent que la teneur en eau du sucre augmente lorsque sa température diminue. Ceci quelle que soit l'humidité relative considérée.

Si on exprime la teneur en eau adsorbée en fonction de l'humidité absolue de l'air, on obtient les courbes représentées sur la figure 7. Selon la température de travail, la quantité d'eau adsorbée par le sucre est différente. A 15 °C, il faut seulement 7 g d'eau par kg d'air sec dans l'air pour humidifier le sucre (le point de rosée de cet air étant à 11g /Kg ), contre 29 g à 30°C (point de rosée : ). La quantité d'eau adsorbée par le sucre est différente selon que l'on conditionne le sucre à basse ou haute température. Ces expériences soulignent l'importance de la notion de température lorsque l'on parle de stabilité du sucre.

Globalement, quelle que soit la température (entre 5°C et 35°C), le sucre du refus de 630  $\mu\text{m}$  conserve ses propriétés d'écoulement en dessous de 58 %.

#### **2. Sucre motté**

Les résultats obtenus (figure 8) sont très surprenants puisque le comportement du sucre en présence d'humidité est complètement

modifié. Les sucres ayant été exposés à une humidité de l'air élevée (HRE > 58%) sont beaucoup plus sensibles à l'adsorption d'eau. Plus le sucre est motté et plus les quantités d'eau adsorbées par le sucre sont importantes. Les ponts liquides formés lors d'une humidification prolongée sont très certainement à l'origine d'un tel comportement. Le sucre motté devient très hygroscopique.

#### Démottage en silo pilote

Le mottage d'une poudre est le résultat d'une humidification suivie d'un séchage. On reproduit en silo pilote ces deux conditions. Si l'air introduit dans le silo est à 70 % d'humidité relative, le tas de sucre motte en surface. Il y a formation d'une croûte au-dessus du tas. La tension de cisaillement est alors de 13 kPa. Au cours de la période d'humidification à 70% d'HR, la tension de cisaillement est comparable à celle d'un sucre libre, soit 4 kPa. A la fin de la période de séchage, la teneur en eau du sucre diminue, c'est la prise en masse. Pour un silo motté en surface, il suffit d'un passage à l'air humide pour que le sucre démotte. L'humidité relative de cet air doit être comprise entre 50 et 60 %. En dessous de cette limite, il n'y a aucun résultat et au-dessus, on aggrave la situation. A l'issue du traitement à l'air humide (50 %), le sucre retrouve une tension de cisaillement normale de 5 kPa. Cet effet est durable dans le temps.

Si l'air insufflé dans le silo pilote est à 72 % d'HR, le mottage est complet. On remarque qu'entre les deux expériences il n'y a seulement que 2 % d'écart d'humidité relative de l'air insufflé. L'effet de cet air sur le sucre est par contre très différent. Dans le premier cas, le silo est motté partiellement et dans le second, la prise en masse est totale. L'humidité relative de 70 % est vraiment l'humidité relative critique du sucre tout-venant. Pour démotter le silo, on insuffle de l'air humide dans le silo (Figure 9).

A 50 % d'HRE, le sucre reste motté, la tension de cisaillement est de 11. L'expérience donne le même résultat si l'air est à 55% ou 60% d'humidité relative. Ces périodes d'humidification sont suivies de périodes de séchage afin de mesurer l'efficacité du traitement à l'air humide ( $T = 25^{\circ}\text{C}$ , HRE = 15%). A l'issue de celles -ci, la tension de cisaillement ainsi que l'observation visuelle, confirment que le sucre reste motté. On en déduit qu'un arrêt brutal de l'apport d'air humide (50-60 % HR) ne permet pas de stabiliser le sucre dans son état fluide ou pendulaire. On se propose alors de réaliser 4 paliers successifs entre 60 et 40 % d'humidité relative (Figure 10). A l'issue de ce traitement à l'air humide, le silo est démotté, la tension de cisaillement reprend une valeur de 5 kPa.

Un séchage trop rapide avec un air très sec, crée un gradient d'humidité relative trop important pour permettre une recristallisation du sucre. La vitesse de séchage est alors en compétition avec la vitesse de cristallisation. En effet, le sirop sursaturé qui enveloppe le cristal de sucre possède une humidité relative d'équilibre d'environ 86 %, si on met ce sucre en contact avec un air à 30 %, la différence d'humidité relative est telle que la prise en masse est instantanée. Si au contraire la diminution de l'humidité relative est lente et progressive, la cristallisation peut avoir lieu, libérant ainsi de l'eau. L'eau ainsi libérée est ensuite emportée par l'air ce qui favorise le démottage des cristaux. La baisse progressive de l'humidité relative de l'air dans le silo aboutit à un nouvel état d'équilibre sucre - air, dans lequel le sucre a retrouvé sa fluidité.

Même si, le démottage du silo pilote est réalisable, il n'est cependant pas sans effets sur la morphologie du cristal de sucre. La Figure 11 illustre le genre d'agglomérations rencontrées après démottage.

## **CONCLUSION**

L'étude en laboratoire des facteurs ( granulométrie, humidité relative et température) affectant la stabilité du sucre cristallisé permet de tirer deux conclusions importantes :

- Plus la granulométrie de l'échantillon est élevée plus le sucre est stable vis à vis de l'air humide qui l'entoure : il adsorbe moins d'eau et ne subit pas les changements de structure qui mènent au mottage. Ceci souligne l'importance d'une OM élevée (de l'ordre de 0.60)
- La présence de fines (< 250  $\mu\text{m}$ ) dans un sucre agit de deux manières différentes. D'une part cela augmente la cohésion du sucre dans les agglomérats et d'autre part la surface d'échange des cristaux est accrue. Ces deux effets combinés ont pour conséquence directe une teneur en eau élevée de l'échantillon considéré et un changement de structure qui aboutit à la prise en masse.

Par ailleurs les courbes de sorption ont également soulevé un problème important à savoir qu'un sucre ayant motté perd ses propriétés originelles. Il devient plus hygroscopique.

L'étude en silo pilote sur du sucre tout venant nous permet de réaliser le démottage à l'aide d'une réhumidification du tas de sucre. De l'air humide à 60 % est introduit dans le silo puis progressivement son humidité relative diminue jusqu'à environ 40 %. Une fois démotté, le sucre retrouve des propriétés d'adsorption d'eau normales même si des soudures subsistent entre certains cristaux.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Gutman S., thèse doctorat pharmacie paris 11 Chatenay (1996)

Contribution a la connaissance physico-chimique des poudres.

Roge B., Mathlouthi M. (2000) Caking of sucrose crystals : effect of water content and crystal size. Zuckerindustrie. **125** (5) 336-340.

Ringard J., Guyot Hermann A-M. (1988) Calculation of disintegrant critical concentration in order to optimize tablets disintegration. Drug. dev. Ind. Pharm. **14** 2321-2339.