

N° d'ordre: 81 ED

THESE

Présentée par

ISABELLE BOHNKE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE PARIS ET DE
L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE
(SPÉCIALITÉ: ENERGETIQUE)

ETUDE EXPERIMENTALE ET THEORIQUE DES TRAITEMENTS THERMIQUES DU BOIS. CARACTERISATION PHYSICO- MECANIQUE DES BOIS TRAITES.

soutenu à Saint-Etienne le 6 janvier 1993 devant le jury composé de

Monsieur	P. REBOUX	Président
Mademoiselle	V. BUCUR	Examinateur
Messieurs	D. GUITARD	"
	A. ZOULALIAN	"
	R. GUYONNET	"
	T. VINH)	"
	C. MOYNE) rapporteurs	"

N° d'ordre: 81 ED

THESE

Présentée par

ISABELLE BOHNKE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE PARIS ET DE
L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE
(SPÉCIALITÉ: ENERGETIQUE)

ETUDE EXPERIMENTALE ET THEORIQUE DES TRAITEMENTS THERMIQUES DU BOIS. CARACTERISATION PHYSICO- MECANIQUE DES BOIS TRAITES.

soutenue à Saint-Etienne le 6 janvier 1993 devant le jury composé de

Monsieur	P. REBOUX	Président
Mademoiselle	V. BUCUR	Examineur
Messieurs	D. GUITARD	"
	A. ZOULALIAN	"
	R. GUYONNET	"
	T. VINH)	"
	C. MOYNE) rapporteurs	"

J'exprime ici ma gratitude envers toutes les personnes qui m'ont permis de pousser aussi loin que possible les recherches sur un sujet complexe et parfois déroutant, mais aux perspectives très intéressantes dans le domaine de la recherche appliquée. Je tiens en premier lieu à remercier Mr Guyonnet, qui a dirigé mes travaux, de m'avoir accueillie dans son équipe Bois et Dérivés Ligneux du département de Génie Industriel et Biotechnologie de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne. Je lui suis reconnaissante de m'avoir accordé sa confiance et de m'avoir fait partager sa passion pour le matériau bois.

Je remercie Mr Reboux, Professeur à l'Ecole des Mines de Paris, d'avoir accepté d'être président du jury. Que Mr Vinh, Professeur à l'Institut Supérieure de Mécanique de Saint-Ouen, soit assuré de ma gratitude pour l'excellent accueil dans son laboratoire ainsi que pour toutes les informations et les conseils qu'il m'a fournis. Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance à Mr Moyne, chargé de recherches à l'Institut Nationale Polytechnique de Lorraine pour les remarques judicieuses qu'il a formulées. Je les remercie tous deux d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail.

J'adresse également mes remerciements aux autres membres du jury qui m'ont honorée de leur participation: Mr Guitard, Professeur à l'université de Bordeaux I, Mr Zoulalian, Professeur à l'Université de Nancy I et Mlle Bucur, chargée de recherches au Centre National de Recherches Forestières de Champenoux. Les "chercheurs du bois" sont peu nombreux en France, mais ont en commun une même passion pour ce matériau et savent la partager. Je remercie tout particulièrement Mlle Bucur pour son aide amicale et chaleureuse et je lui suis reconnaissante de m'avoir soutenue tout au long de cette "aventure". Je remercie également le professeur Zoulalian de m'avoir offert la possibilité d'effectuer des essais de thermo-analyse dans son laboratoire de photochimie appliquée à l'université de Nancy I.

Je remercie beaucoup Mr Besset Mlle Bartholin dont l'habilité et la grande connaissance du matériel ont permis de mener à bien les campagnes d'essai malgré leurs emplois du temps chargé. Je remercie également tout le personnel du département Qualité des Bois du CNRF dont j'ai pu apprécier la gentillesse et la serviabilité les nombreuses fois où je leur ai rendu visite. De même, je tiens à remercier Mr LeGovic et Mr Khébibèche du laboratoire d'essais mécaniques du Centre Technique du Bois et de l'Ameublement pour m'avoir fait bénéficier de leur matériel et de leur assistance.

J'aimerais maintenant témoigner ma reconnaissance à tous ceux qui ont participé, même de manière indirecte, à l'élaboration de ce mémoire. Ainsi, je remercie les autres chercheurs du laboratoire que j'ai cotoyés pendant ces années et qui ont été source de discussions et d'intuitions: parmi eux, tout d'abord Florence Avat, qui m'a aidée dans les expériences de DSC et dont la proximité de nos sujets a permis des échanges d'idées et de résultats intéressants pour la compréhension des phénomènes; ensuite, Ivana Nebesarova avec qui la discussion a toujours été fructifiante et à qui je dois de magnifiques photographies au microscope électronique; Georges Crawley pour son aide concernant à la fois les problèmes informatiques et la rédaction en langue anglaise; Françoise Viguier, Helmut Meier, Satish Kumaran, Gilles Durant et Martine Naessens qui par leur joie de vivre et leur entrain ont permis de surmonter les "passages à vide".

Je tiens également à remercier les stagiaires de la Technische Universität von Berlin qui ont travaillé sur ce sujet: Bernt Pose pour avoir mis au point le protocole d'essai en bain d'huile, Andreas Polomski pour avoir avec brio informatisé la modélisation tout en réalisant des séries d'expériences et pour finir, Amir Mansour pour avoir réalisé le plan d'expériences en plein hiver dans un hall glacial. Leur contribution à ce travail est de taille et je ne saurais trop louer leur efficacité et leur sérieux.

La réalisation de ce travail n'a été effective que grâce au soutien financier de la région Rhône-Alpes qui m'a octroyé une bourse Recherche et Technologie pendant trois ans. Que FIBRA, et surtout Mr Storty, qui ont soutenu avec enthousiasme ce projet soient également assurés de ma gratitude. Je n'oublie pas non plus les établissements Bonche qui nous ont fourni gracieusement en matériau. J'espère que ce travail portera des fruits et contribuera à ce que "le bois avance".

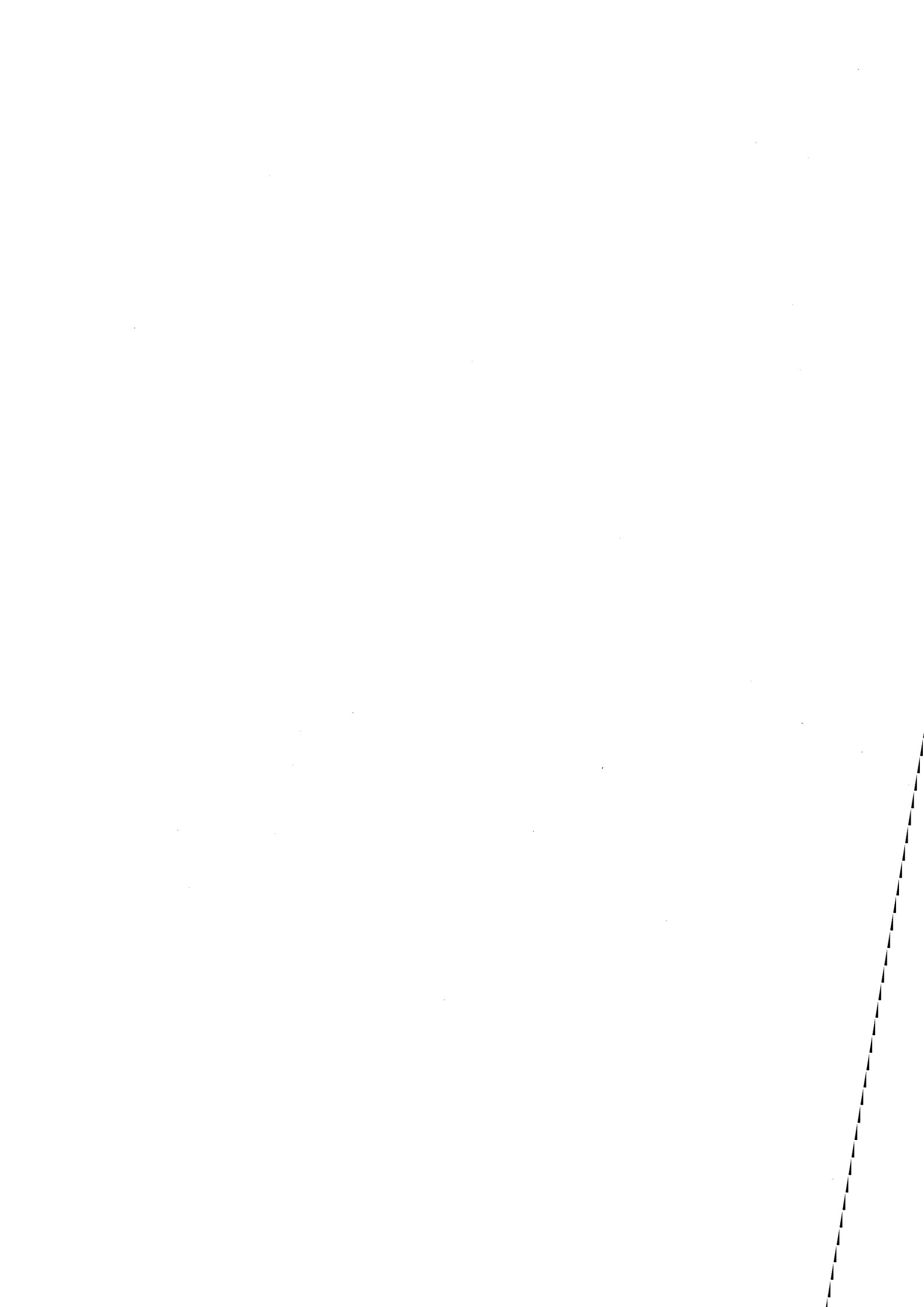


TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION	1
--------------------	---

CHAPITRE PREMIER: LE MATERIAU BOIS

I.1. GENERALITES	3
I.1.1. Une matière première vivante : l'arbre.....	3
I.1.2. La forêt dans le monde et en France	3
I.1.3. La filière bois.....	5
I.1.4. Le bois et la recherche scientifique.....	7
I.2. ANATOMIE	9
I.3. COMPOSITION CHIMIQUE.....	11
I.3.1. Les différents constituants	12
I.3.1.1. La cellulose.....	12
I.3.1.2. Les hémicelluloses.....	13
I.3.1.3. Les lignines.....	13
I.3.1.4. Les extractibles.....	14
I.3.2. Organisation supramoléculaire	15
I.3.2.1. dans la microfibrille	15
I.3.2.2. dans la paroi cellulaire.....	16
I.4. LE BOIS: MATERIAU HYGROSCOPIQUE	18
I.4.1. L'eau dans le bois.....	18
I.4.1.1. L'eau libre.....	18
I.4.1.2. L'eau liée	19
I.4.1.3. Phénomènes de sorption.....	19
I.4.1.4. Le point de saturation des fibres	20
I.4.2. Phénomènes de transport de l'humidité	20
I.4.2.1. Migration de l'eau dans le domaine hygroscopique	20
I.4.2.2. Migration de l'eau libre	21
I.4.2.3. Différences de comportement entre résineux et feuillus.....	21
I.4.3. Retrait et gonflement du bois	21
I.5. PROPRIETES PHYSICO-MECANQUES	23
I.5.1. Densité	23
I.5.2. Propriétés mécaniques et rhéologiques	24
II.5.2.1. Modélisation micromécanique.....	25
II.5.2.2. Elasticité linéaire dans le repère d'orthotropie.....	25
I.5.2.3. Viscoélasticité	28
I.5.2.4. Transition vitreuse des différents constituants du bois.....	29
I.5.3. Propriétés thermiques du bois.....	33
I.5.3.1. Dilatation thermique	33
I.5.3.2. Capacité calorifique du bois	34
I.5.3.3. Conductivité thermique	34
I.5.3.4. Diffusivité thermique du bois	36

CHAPITRE SECOND: ETUDE EXPERIMENTALE ET THEORIQUE DU TRAITEMENT DE RETIFICATION

II.1. RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES	37
II.1.1. Généralités.....	37
II.1.2. La pyrolyse du bois.....	39
II.1.2.1. Description	39
II.1.2.2. Les facteurs d'influence.....	40
II.1.3. Analyse thermique du bois.....	42
II.1.3.1. Dégradation thermique des différents constituants.....	43
II.1.4. Premières étapes de la pyrolyse	45
II.1.5. Cinétiques chimiques.....	46

TABLE DES MATIERES

II.1.7. Transferts de chaleur et de masse	53
II.1.8. Modélisation	57
II.1.8.1. Couplage conduction-réaction.....	57
II.1.8.2. Prise en compte des phénomènes de convection interne	58
II.1.8.3. Prise en compte de la convection forcée des gaz. Inclusion d'une équation aux moments.....	60
II.1.8.4. Pyrolyse d'un bois humide. Prise en compte des transferts de masse de l'eau.....	61
II.2. ETUDE EXPERIMENTALE DU PROCEDE DE RETIFICATION	64
II.2.1. Matériel.....	64
II.2.1.1. Les fours de traitements.....	64
II.2.1.1.1. Les fours à gaz	64
II.2.1.1.2. Les fours à bain	66
a/ Four vertical	66
b/ Four horizontal	66
II.2.1.2. Mesure des profils de température.....	68
II.2.1.2.1. Implantation des thermocouples.....	69
II.2.1.2.2. Déroulement de la manipulation	72
II.2.2. Résultats expérimentaux	73
II.2.2.1. Résultats préliminaires	73
II.2.2.1.1. Cinétique globale.....	73
II.2.2.1.2. Mesure des champs de température au centre.....	76
II.2.2.2. Facteurs d'influence.....	77
II.2.2.2.1. Résultats expérimentaux.....	77
II.2.2.2.1.1. Allure générale des courbes T(t) pour différents rayons et T (r) pour différents temps	77
II.2.2.2.1.2. Résultats	81
II.2.2.2.2. Discussion sur l'influence des facteurs.....	83
II.2.2.2.2.1. Influence du diamètre de l'échantillon.....	83
II.2.2.2.2.2. Influence de l'humidité.....	84
II.2.2.2.2.3. Exothermicité de la réaction de pyrolyse.....	86
II.2.2.3. Plan d'expérience.....	88
II.2.2.3.1. Description du plan d'expérience.....	88
II.2.2.3.1. Résultats.....	89
II.2.2.3.2. Calcul des effets.....	90
II.2.2.3.3. Influence des différents facteurs.....	92
II.2.2.3.4. Comparaison pour un facteur donné.....	93
II.2.3. Analyse thermique par TG-DSC.....	95
II.2.3.1. Mesure de la capacité calorifique	95
II.2.3.1.1. Principe.....	95
II.2.3.1.2. Expériences	96
II.2.3.1.3. Résultats.....	97
II.2.3.2. Thermogravimétrie isotherme	98
II.2.3.2.1. Principe.....	98
II.2.3.2.2. Expériences	100
II.2.3.2.3. Résultats.....	100
II.2.3.3. Enthalpie de pyrolyse	103
II.2.4. Conclusions de l'étude expérimentale	104
II.3. MODELISATION.....	105
II.3.1. Hypothèses de modélisation.....	105
II.3.2. Mise en équations.....	106
II.3.2.1. Bilan d'énergie.....	106
II.3.2.2. Bilan de masse	107
II.3.2.3. Bilan sur l'humidité	107
II.3.3. Résolution numérique.....	108

TABLE DES MATIERES

II.3.3.1. Différences finies	108
II.3.3.2. Méthode de Crank-Nicholson	112
II.3.4. Résultats	114
II.3.4.1. Influence des paramètres.....	114
II.3.4.2. Comparaison modèle-expérience	118
II.3.4.3. Conclusions et perspectives	121

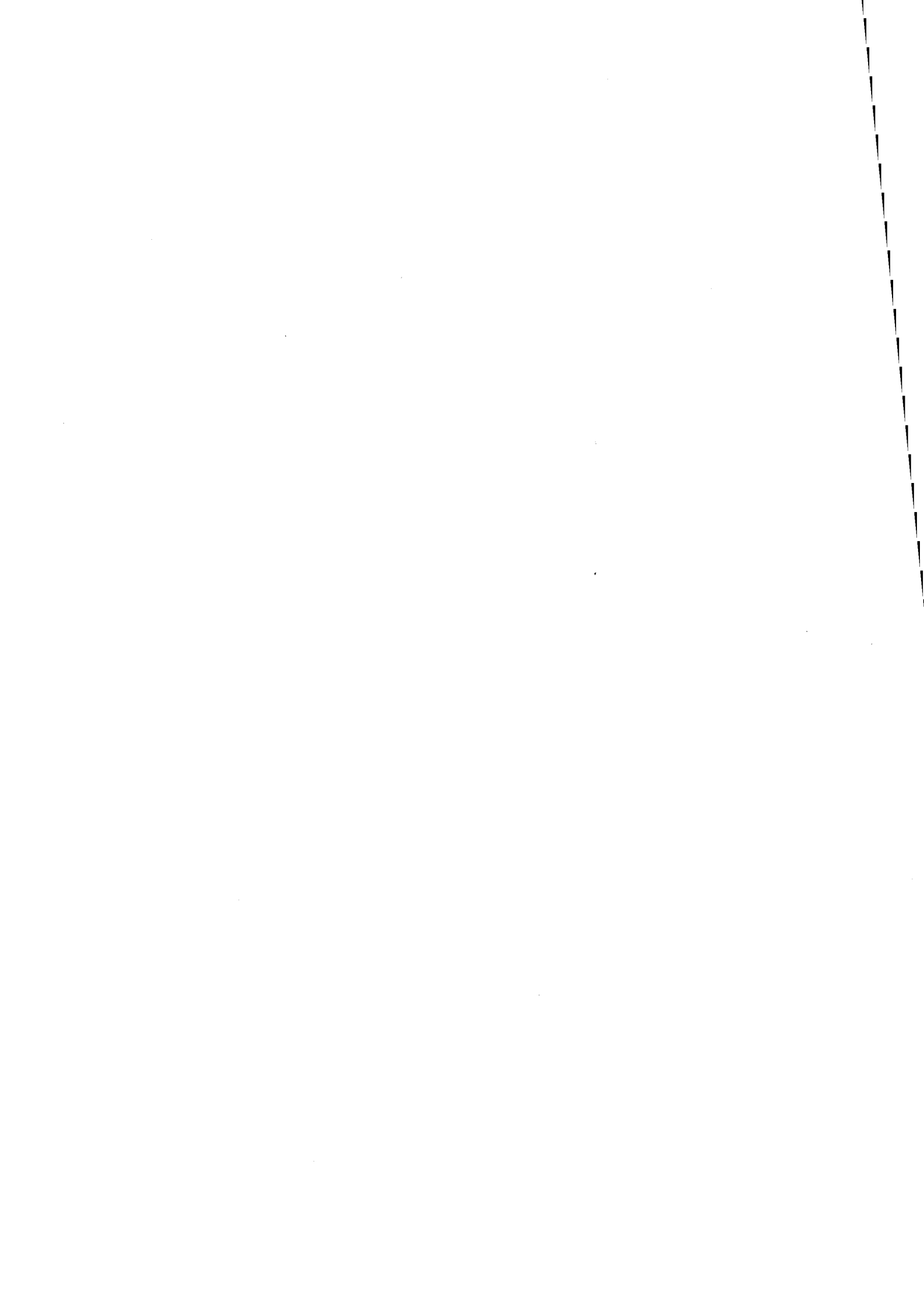
CHAPITRE TROISIEME: CARACTERISATION PHYSICO-MECANIQUE DU BOIS RETIFIE

INTRODUCTION	123
III.1 MODIFICATIONS PHYSICO-CHIMIQUES	126
III.1.1 Modifications chimiques des constituants.....	126
III.1.2. Modifications de la structure anatomique	127
III.1.3 Modifications de la masse volumique	129
III.1.4. Variations de l'hygroscopie du matériau	133
III.2. MODIFICATIONS DES PROPRIETES MECANIQUES.....	135
III.2.1. Analyse de la propagation d'une impulsion ultrasonore.....	135
III.2.1.1. Rappels théoriques.....	136
III.2.1.1.1 Résolution de l'équation du mouvement. Cas d'une onde plane harmonique	138
III.2.1.1.2. Atténuation des ondes planes - dispersion.	139
III.2.1.1.3. Réflexion et réfraction des ondes.....	141
III.2.1.1.4. Spectroscopie ultrasonore.....	141
III.2.1.1.5. Application au bois.....	143
III.2.1.2 Description du montage expérimental	145
III.2.1.3. Essais préliminaires	149
III.2.1.3.1. Essais sur différents matériaux	149
III.2.1.3.2. Essais sur des échantillons de longueurs différentes	150
III.2.1.3.3. Influence de la fréquence.....	152
III.2.1.3.4. Influence du champ des transducteurs et de la géométrie des échantillons	154
III.2.1.3.5. Répétabilité des mesures	158
III.2.1.4. Mesures dans les directions d'orthotropie du bois.....	158
III.2.1.5. Résultats	166
III.2.1.5.1. Epicéa.....	166
III.2.1.5.2. Essais sur des différentes essences	172
III.2.1.5.2.1. Résultats des mesures	172
III.2.1.5.2.2 Estimation du comportement global par la méthode des invariants acoustiques.....	173
III.2.1.6. Conclusions.....	178
III.2.2. Vibrations forcées.....	179
III.2.2.1. Montages expérimentaux	179
III.2.2.1.1. Montage expérimental de flexion alternée.....	179
III.2.2.1.2 Montage expérimental de torsion alternée	182
III.2.2.2. Résultats	182
III.2.2.3. Conclusions	183
III.2.3. Essais statiques.....	186
III.2.3.1. Essais de compression	186
III.2.3.2. Flexion circulaire	187
III.2.3.2.1. Description.....	187
III.2.3.2.2. Résultats expérimentaux.....	188
III.2.3.2.3. Discussion	189
III.2.3.3. Essais en flexion trois points.....	190
III.2.3.3.1 Essais sur les poutres traités en four à gaz	190

TABLE DES MATIERES

III.2.3.3 2.Essais sur les poutres traitées en bain.....	191
III.2.3.4. Conclusions	191
III.2.4. Analyse Thermo Mécanique	195
II.2.4.1. Principe de la mesure.....	195
II.2.4.1.1. Appareillage.....	195
II.2.4.1.2.Programmation en température.....	196
III.2.4.2 Résultats	197
III.2.4.2.1. Allure générale des courbes.....	197
II.2.4.2.2.Comparaison des courbes en fonction du traitement.	198
III.2.4.3. Conclusions	202
CONCLUSIONS.....	205

NOMENCLATURE



LISTE DES NOTATIONS UTILISEES:

(dans l'ordre d'apparition dans le texte)

X : taux d'humidité

M_H : masse de l'échantillon humide

M_0 : masse anhydre

X_{SF} : point de saturation des fibres

(D) : tenseur de conductivité

→

ϕ : flux d'humidité

B : rétractibilité ou retrait volumique

V_s : volume de l'échantillon saturé d'eau

V_0 : volume de l'échantillon à l'état anhydre

V_H : volume de l'échantillon à X

α_V : coefficient de retrait volumique

α_L : coefficient de retrait longitudinal

α_R : coefficient de retrait radial

α_T : coefficient de retrait tangentiel

ρ_H : masse volumique à l'humidité H

ρ_0 : masse volumique anhydre

ρ_b : densité basale

ρ^* : densité vraie de la matière ligneuse

π : porosité

σ_{rt} : contrainte maximale à la rupture en traction

σ_{rc} : contrainte maximale à la rupture en compression

σ_{elt} : contrainte limite d'élasticité en traction

σ_{elc} : contrainte limite d'élasticité en compression

ϵ_{rt} : déformation maximale à la rupture en traction

ϵ_{rc} : déformation maximale à la rupture en compression

ϵ_{elt} : déformation limite d'élasticité en traction

ϵ_{elc} : déformation limite d'élasticité en compression

ϵ_{res} : déformation plastique résiduelle

e_{ij} : composantes du tenseur des déformations

σ_{ij} : composantes du tenseur des contraintes

S_{ijkl} : composantes du tenseur des souplesses

C_{ijkl} : composantes du tenseur des rigidités

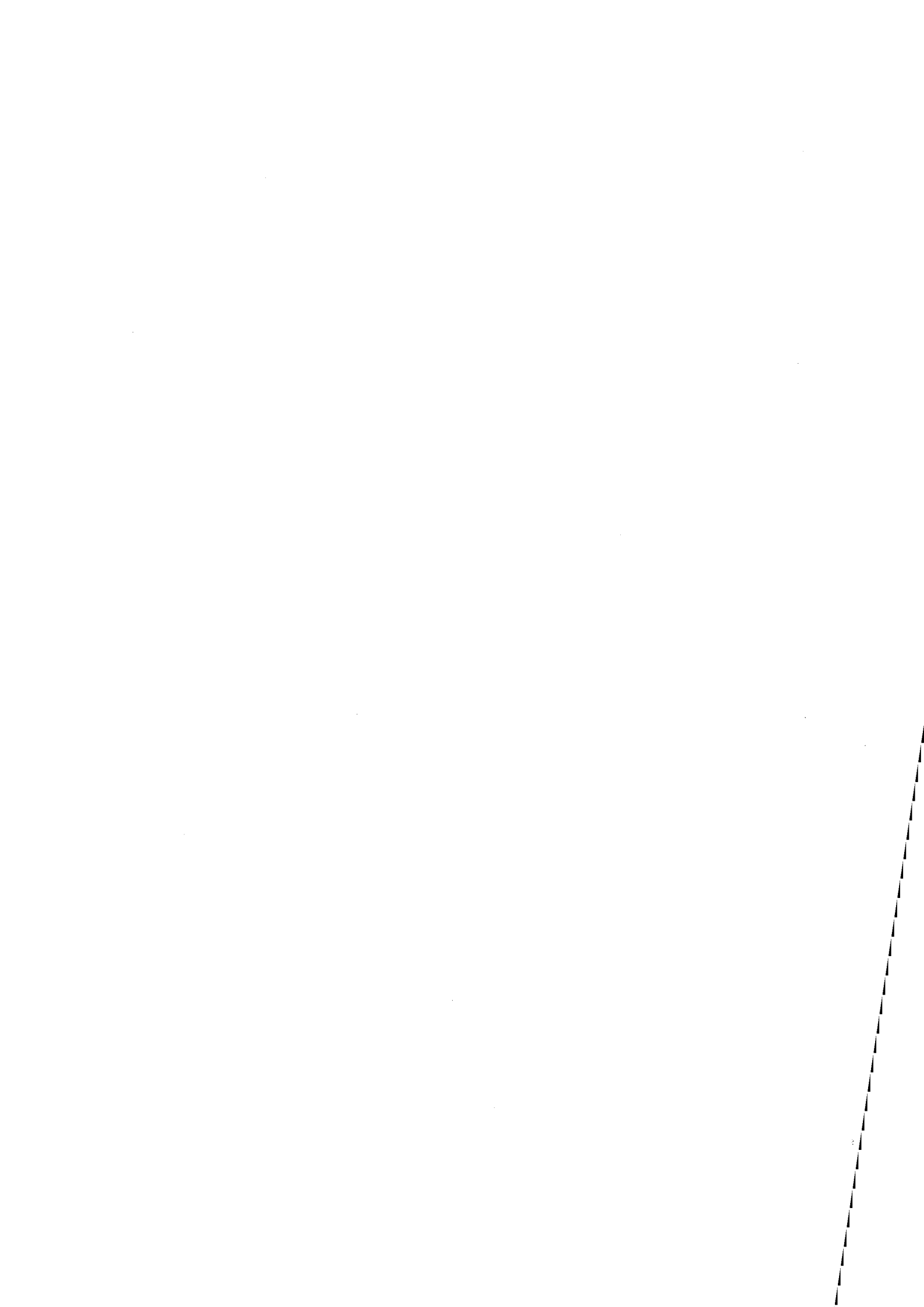
E_L : module d'Young longitudinal

E_R : module d'Young radial
 E_T : module d'Young tangentiel
 G_{LT} : module de cisaillement dans le plan LT
 G_{LR} : module de cisaillement dans le plan LR
 G_{RT} : module de cisaillement dans le plan RT
 ν_{LT}
 ν_{LR}
 ν_{RT} : coefficients de Poisson dans les plans d'orthotropie
 ν_{RL}
 ν_{TL}
 ν_{TR}
 $S_{ijkl}(t)$: complaisances de fluage
 $C_{ijkl}(t)$: rigidités ou modules de relaxation
 $J(t)$: complaisance de fluage
 $G(t)$: module de relaxation
 T : température
 T_v : température de transition vitreuse
 C_p : capacité calorifique
 λ : conductivité thermique
 λ_a : conductivité thermique de l'air
 λ_b : conductivité thermique du bois
 a : diffusivité thermique
 m : masse
 t : temps
 E : énergie d'activation
 k_0 : constante de temps
 R : constante des gaz parfaits
 α : degré d'avancement de la réaction
 r : rayon
 R : rayon du cylindre
 T_f : température du four
 σ : constante de Boltzmann
 ε : émissivité
 ΔH_p : enthalpie de pyrolyse
 C_g : capacité calorifique des gaz
 C_{pb} : capacité calorifique du bois
 C_{ph} : capacité calorifique de l'eau

C_{pc}: capacité calorifique du résidu carboné
C_{pa} : capacité calorifique du bois actif
C_{pg} : capacité calorifique des gaz
ρ_g : densité des gaz
ρ_b : densité du bois
ρ_f : densité finale
M_g : flux massique des gaz
V_g : vitesse du flux gazeux
D : coefficient de diffusion longitudinal
D₀ : valeur de D pour $1/T = 0$
E_D : énergie d'activation de diffusion
k_l : perméabilité à la phase liquide
D_{v0} : coefficient de diffusion de la vapeur
f : facteur de forme du milieu poreux
ω_v : fraction massique de vapeur dans la phase air/vapeur
k_g : perméabilité à la phase gazeuse
ν_l : viscosité cinématique de la phase liquide
ν_g : viscosité cinématique de la phase vapeur
P_g : pression de la phase gazeuse
T_b : température d'ébullition
H_v : enthalpie de vaporisation
kt : pas en temps
hr : pas en espace
i : indice d'espace
j : indice en temps
u_i : déplacement dans l'axe i
ω : pulsation de l'onde
k : nombre d'onde
P : vecteur polarisation
v : vecteur de la direction de propagation
λ : longueur d'onde
f : fréquence
tg(δ) : tangente de l'angle de perte
V_p : vitesse de phase
V_g : vitesse de groupe
A : amplitude (en V ou dB) du signal transmis
A₀ : amplitude du signal de référence

G_e : gain de l'atténuateur dans le cas avec échantillon
 G_t : gain de l'atténuateur pour le signal de référence
 A_c : atténuation de l'amplitude calculée sur les amplitudes de pics (en V)
 A_s : atténuation mesurée sur le spectre en fréquence à la fréquence centrale
 f_c : fréquence centrale du spectre du signal de référence
 f_{ct} : fréquence centrale du spectre du signal avec échantillon
 f_m : fréquence du maximum du spectre
D: épaisseur de l'échantillon
 α : atténuation d'amplitude rapportée à la distance parcourue
 l_0 : longueur de champ proche
Q: facteur de qualité
 I_{ij} : invariant acoustique dans le plan i,j (i,j (L,R,T)
 I_{ratio} : rapport d'anisotropie
2M: masse de l'éprouvette de flexion dynamique
2L: longueur
b : largeur
h : épaisseur
 f_0 : fréquence de résonance
E : module d'Young longitudinal
J : module d'inertie de l'éprouvette
 W_r : travail mécanique à la rupture
 T_s : température du pic de séchage (TMA)
 T_{inf} : température du point d'inflexion (TMA)
 T_{dec} : température de décomposition (TMA)

INTRODUCTION



Le bois est sans doute un des matériaux les plus utilisés et des moins connus. Bien sûr, son origine biologique le distingue des autres matériaux industriels. Il n'est pas mis en oeuvre, mais est le produit de la croissance d'un tissu cellulaire végétal. "Bio-composite" poreux, il est anisotrope, hétérogène à tous les niveaux de description, hygroscopique et dégradable. Du fait de la complexité de ses polymères constitutifs, de son organisation anatomique et de sa nature triphasique (solide, liquide et gaz), il se prête mal à la modélisation et aux calculs prévisionnels. Sa mise en oeuvre est restée pendant longtemps essentiellement empirique. Cela explique ses pertes de terrain sur les marchés traditionnels de plus en plus attaqués par des matériaux concurrents ayant bénéficié d'une recherche soutenue. Cependant, un nouvel intérêt pour le bois voit le jour avec le développement accru des sciences du vivant et la redécouverte de ses qualités. Il débouche sur une connaissance beaucoup plus fondamentale des relations entre sa structure et ses propriétés chimiques, physiques et mécaniques. Matériau mieux connu, mieux préservé ou transformé, le bois peut être à l'origine de toute une gamme de produits nouveaux, certains en cours d'industrialisation, d'autres encore au stade du laboratoire.

Les implications de ces recherches sont multiples, tant au niveau de l'environnement que de l'économie : citons entre autres une meilleure gestion de la forêt par l'utilisation et la valorisation des essences nationales et des déchets forestiers, la revitalisation d'un secteur économique défaillant, exportateur de matière première et importateur de produits finis. Rappelons que ces trente dernières années, la surface boisée mondiale a été réduite d'un tiers, essentiellement dans les zones tropicales (bien que les forêts boréales commencent à être gravement menacées). Les coupes à blanc ont des conséquences dramatiques sur les climats, les sols, la faune et la flore. Pourtant, la protection des forêts naturelles passe par l'amélioration à grande échelle des techniques d'exploitation forestière, qui ne peut se faire que si en aval, le secteur industriel est en bonne santé et prêt à investir dans la recherche sur des matériaux à base de bois de plus haute valeur ajoutée. Sinon, la forêt n'est qu'un gisement de matière première soumis aux fluctuations des cours mondiaux.

Un des enjeux de la recherche sur le bois est la mise au point de traitements de préservation et de stabilisation du bois naturel, peu onéreux et plus performants que les traitements classiques. Un des procédés actuellement à l'étude consiste à soumettre le bois à des traitements thermiques. Ces traitements, appelés réticulation du fait de la mise en évidence de phénomènes de réticulation de la matière ligno-cellulosique, ont pour effet de réduire son hygroscopie, d'améliorer sa stabilité dimensionnelle, d'augmenter sa résistance aux agents de dégradation et de modifier ses propriétés physico-mécaniques.

Les applications de ces traitements sont nombreuses et pourraient permettre la valorisation

d'essences nationales à faible valeur , par exemple le peuplier, en concurrence des bois exotiques:

- traitement de pièces de bois massif destinées à être utilisées en extérieur
- fabrication de matériaux composites à matrice organique et charge de bois rétifé fragmenté
- association avec d'autres matériaux (en particulier , avec du verre)
- incorporation à des liants hydrauliques (plâtre, ciment, ...)

Dans le travail qui suit, nous avons essayé d'approcher :

- les mécanismes et la modélisation de ces traitements
- la caractérisation physico-mécanique des produits obtenus.

En effet, pour optimiser le procédé qui est dans sa phase pré-industrielle, il est nécessaire de connaître avec précision les phénomènes en jeu lors du traitement en relation avec les modifications de propriétés qui en découlent.

Le premier chapitre décrit le matériau de base, le bois. Le second chapitre est consacré à l'étude expérimentale et théorique du procédé de réтификаtion : nous avons mesuré à différents rayons les profils de température dans des cylindres de bois traités en bain afin de se placer dans des conditions isothermes, et étudié l'influence de différents facteurs : température, diamètre, humidité initiale, nature du bain et essence de bois. Parallèlement, nous avons cherché à modéliser mathématiquement les phénomènes de transfert de masse et de chaleur et comparé les résultats de cette modélisation à nos expériences.

Dans le troisième et dernier chapitre, nous nous sommes intéressés à la caractérisation du bois traité. En effet, il est primordial de pouvoir relier les modifications des propriétés physiques aux conditions de traitement afin de choisir les paramètres optimaux de son déroulement (qui, bien sûr, peuvent dépendre de l'application recherchée). A cet effet, nous avons étudié principalement les modifications des propriétés mécaniques et développé une méthode de contrôle non-destructif par spectroscopie ultrasonore. En complément de cette méthode, nous avons utilisé d'autres méthodes de caractérisation : vibrations forcées de poutre, essais statiques de flexion et de compression, analyse thermo-mécanique.

CHAPITRE PREMIER

LE MATERIAU BOIS



I.1. GENERALITES

I.1.1. Une matière première vivante : l'arbre

Le matériau que nous étudions, le bois, est une matière organisée et complexe qui a pour origine un organisme vivant, l'arbre. L'arbre est une forme *autotrophe*, capable de produire sa propre énergie en utilisant des éléments très simples de bas niveau énergétique ($\text{CO}_2, \text{H}_2\text{O}$, sels) grâce à l'absorption et la fixation de l'énergie solaire. Ce sont les organismes autotrophes qui fabriquent par photosynthèse les molécules nécessaires aux organismes *hétérotrophes* (dont l'homme), qui ont besoin de dégrader ces molécules pour produire leur énergie (Dumon, 1980).

Il existe un grand nombre d'espèces d'arbres, et nous ne rentrerons pas dans le détail d'une classification botanique exhaustive. La principale distinction se fait entre angiospermes et gymnospermes, et de façon plus pratique, entre feuillus et résineux. Les différences climatiques et géographiques ont abouti à la formation de peuplements très différents d'arbres. La diversification naturelle s'est faite sous l'influence de nombreux facteurs: climat, nature des sols, hydrologie, biotope environnant.

De plus, l'activité humaine a fait reculer considérablement le couvert forestier et l'a profondément modifié (un exemple marquant est la quasi-disparition de la forêt méditerranéenne, sur-exploitée depuis des millénaires). En effet, le bois est un des premiers matériaux utilisés par l'homme, comme source d'énergie et comme matériau de construction. La découverte de sources d'énergie fossile, la révolution industrielle, le développement de l'industrie pétrochimique ont promu d'autres matériaux : aciers, puis plastiques, mais le bois reste un matériau de qualité sous-estimé. Afin de situer notre sujet dans son contexte économique, nous avons choisi de décrire très rapidement l'état de la ressource forestière mondiale et française, ainsi qu'une description sommaire de la "filière-bois" française. Sous ce terme sont regroupées les activités de tous les secteurs mettant en jeu l'exploitation et la transformation de la matière première ligno-cellulosique.

I.1.2. La forêt dans le monde et en France

On évalue à 29% de la surface des terres le couvert forestier mondial, soit 4 milliards d'hectares. La moitié environ est située autour de l'équateur en forêts dites tropicales. Les feuillus y sont en majorité et leur rythme de croissance suit l'alternance des saisons humides et sèches. Dans les régions à climats tempérés, la croissance est marquée d'un arrêt dans la période hivernale. Plus augmentent la latitude et l'altitude, plus nombreux sont les résineux. La récolte mondiale est estimée à 3 milliards de m^3 par an de bois rond. Près de la moitié est brûlée pour produire de l'énergie. La ressource française est le gisement le plus important de la CEE (fig.I.1),

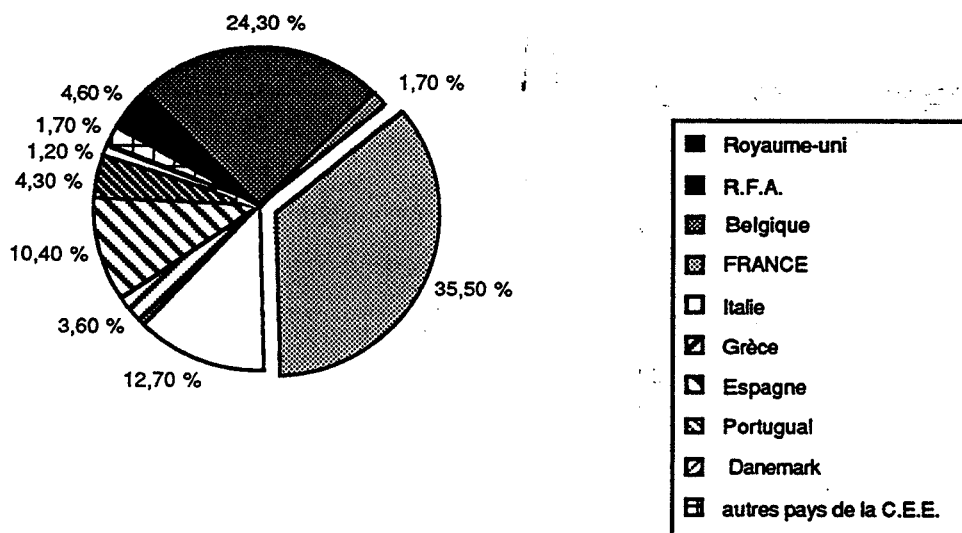


Figure I.1. Répartition par pays du volume de bois sur pied en 1980
(Comité du bois, 1985)

mais la France et la CEE occupent une part très modeste dans la ressource mondiale (1% et 3,5 % du volume mondial) et les grandes régions productrices de l'hémisphère Nord sont la Scandinavie (Suède, Finlande), l'Amérique du Nord (Etats-Unis, Canada) et l'ex-URSS (Tab.I.1).

	surface forestière (Mha)	total ressource (Gm ³)	accroissement/an (Mm ³)
SCANDINAVIE	48,2	4,3	146
AMERIQUE DU NORD	410	46,4	1067
EX- URSS	534	67	750
CEE	38,7	4,4	172

Tableau I.1. Ressources forestières des grandes régions productrices

La forêt tropicale connaît une régression accélérée due plus à l'extension des terres agricoles qu'à l'exploitation forestière elle-même. Chaque année, ce sont, selon la Food and Agricultural Organisation, 7 millions d'hectares qui sont défrichés, mais il existe aussi de grandes plantations artificielles à très hauts rendements bien que leur surface au total soit très réduite (ex: eucalyptus

au Brésil) .

La ressource forestière française est caractérisée par rapport à celle des pays industrialisés grands producteurs forestiers et à celle des plantations tropicales par une forte hétérogénéité biologique et régionale. Cette profonde diversité de la ressource rend plus difficile son exploitation rationnelle (au contraire de l'Allemagne ou de la Scandinavie où prédominent des espèces résineuses de caractéristiques bien connues).

Depuis 1946, fondation du Fonds Forestier National, la politique forestière française a été d'encourager le boisement et le reboisement. L'ensemble des formations boisées occupe actuellement en France 15,1 millions d'hectares, soit 27% de la surface, dont 13,9 millions d'hectares de forêt productive. On estime qu'en moyenne pour 2 ha de terre agricole, il y a 1 ha de forêt. Elle est très inégalement répartie selon les régions (fig.I.2) et par type d'essence (fig.I.3). Les principales conséquences du reboisement engagé depuis la Libération ont été:

- une augmentation du stock et de l'étendue de la ressource résineuse ;
- une modification de la répartition géographique des essences ;
- une production de bois dont les propriétés ne sont pas traditionnellement connues.

Qui plus est, de nouvelles perspectives d'extension de la forêt sont offertes par l'abandon croissant de terres par l'agriculture.

I.1.3. La filière bois

La production biologique, c'est-à-dire l'accroissement en volume de la ressource sur pied, atteint 60 millions de m³ par an pour un volume exploité de 35 millions. Avec l'arrivée à maturité de nombreux peuplements, nous ne devrions craindre aucun problème d'approvisionnement. Cependant, si l'on regarde la balance commerciale de cette branche, on remarque son spectaculaire déficit . Aux alentours de 14 milliards de francs en 1985, il atteint les 23 milliards de francs en 1990. Ce déficit démontre l'incapacité des différents acteurs de la filière à répondre à la demande intérieure et se traduit par un volume d'exportations de matière première et de produits finis qui n'arrive pas à solder le volume d'importations.

La filière est traditionnellement séparée en deux branches selon la taille des bois exploités: industrie du bois d'oeuvre (bâtiment, ameublement) et bois-industrie ou bois de trituration (papier, panneaux), et deux étapes : première et seconde-transformation. Levêque et Peguret (1988) ont analysé la situation économique de la filière en la séparant en différents "acteurs",

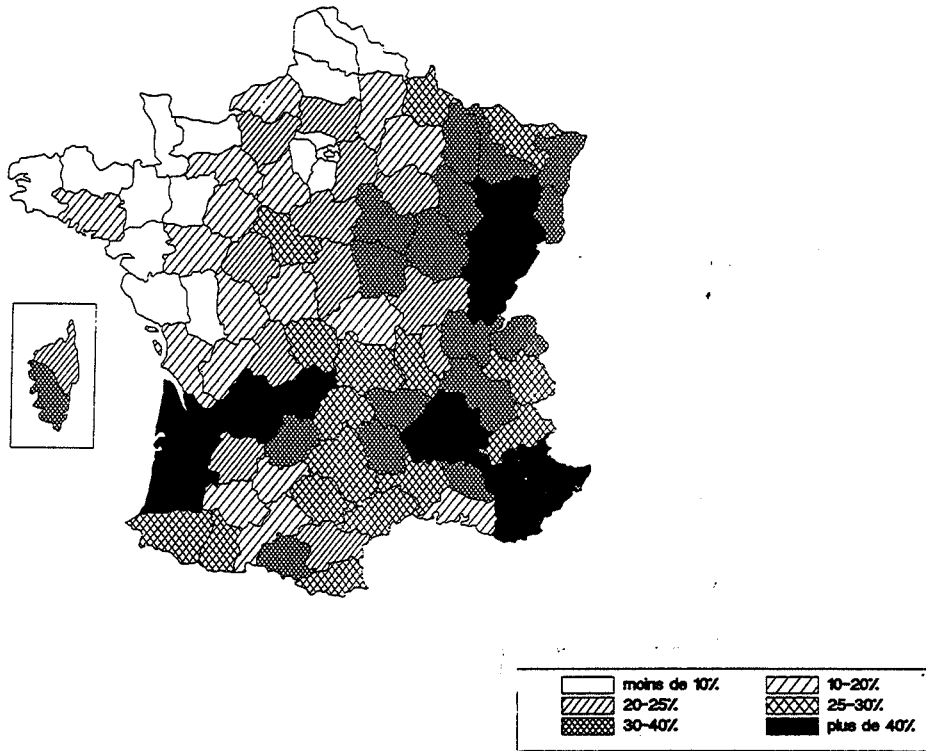


Figure I.2. Taux de boisement par département
(d'après Levêque et Peguret, 1988)

Les essences dominantes (C : conifères, F : feuillus)

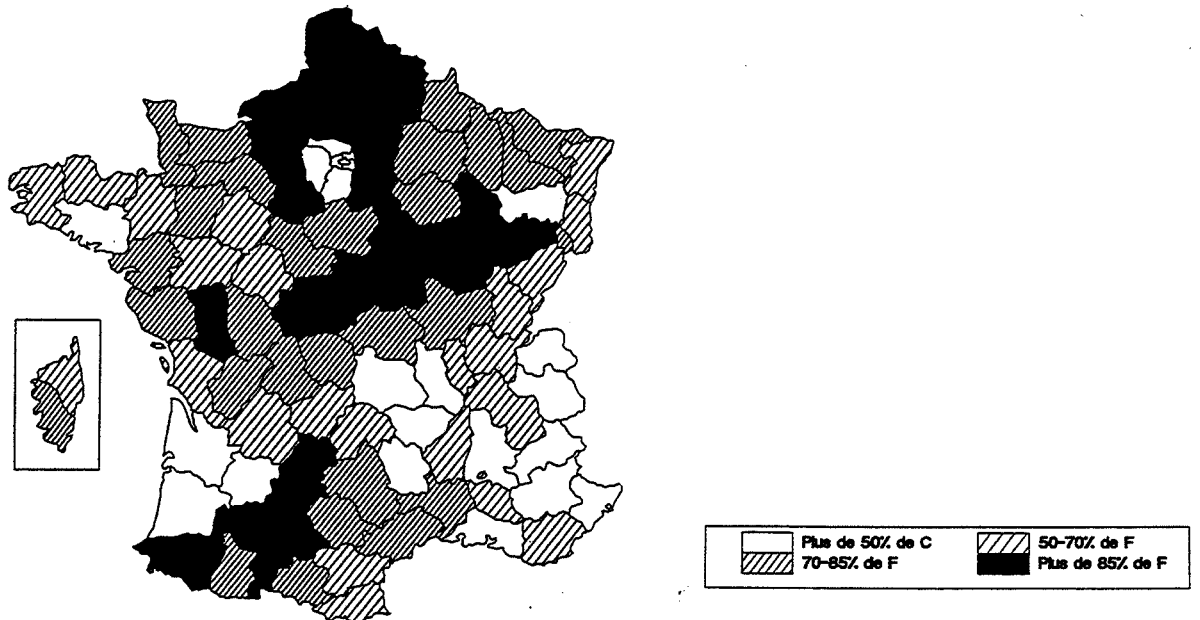


Figure I.3. Répartition géographique par type d'essences
(d'après Levêque et Peguret, 1988)

avec une distinction sectorielle primaire, secondaire et tertiaire et dans le secteur industrie, une distinction entre industries du bois-matériau et celles du bois-papier.

Une des principales remarques à propos de ce bilan est le manque de cohésion entre les différents acteurs. En particulier, dans le secteur du bois-matériau, les liens de la production avec la distribution sont médiocres et par suite, la production a beaucoup de difficulté à s'adapter à la demande (encore plus à la créer par une politique de marketing ou de publicité). La vitalité du secteur bois-papier est plus forte, mais près de la moitié des capitaux sont étrangers (Etats-Unis ou Scandinavie), quant au bois énergie, ce secteur est quasiment inexistant. Le bois est une source d'énergie beaucoup moins dense que les combustibles fossiles et il est destiné avant tout à un usage local. Depuis les chocs pétroliers, c'est essentiellement un redéveloppement de l'autoconsommation que l'on a pu observer. On peut cependant faire la remarque qu'en cas de crise énergétique grave, le bois constitue un stock utilisable important.

I.1.4. Le bois et la recherche scientifique

Le poids de la recherche dans la filière-bois est très faible du fait de sa structure artisanale et morcelée. Qu'il s'agisse de la connaissance fondamentale du matériau ou de développement de nouvelles technologies destinées à des applications industrielles, on ne peut que s'étonner du retard de la France dans ce domaine. Cependant, à l'occasion des premiers chocs pétroliers, la politique gouvernementale a été d'inciter les études scientifiques sur le bois, dont on réalisa soudain qu'il représentait une ressource nationale importante et renouvelable. A cette période, de nombreuses études sur la biomasse et sa valorisation ont été lancées et c'est à cette occasion qu'a été développé et commercialisé le procédé ARMINES de torréfaction du bois (Bourgeois, 1986).

Mais la conjoncture internationale a plus d'un tour dans son sac. Le prix du baril se stabilise, et à l'heure actuelle, il serait même plutôt en train de baisser. Il n'est alors plus rentable de chercher à développer des recherches sur le bois énergie. L'idée alors est d'orienter les efforts de recherche sur le secteur du bois matériau et de générer une nouvelle gamme de produits à base de bois à plus haute valeur ajoutée et plus compétitifs. Car, face à une forte concurrence des plastiques et des métaux et des exigences de plus en plus élevées pour la qualité des produits, les besoins de l'industrie du bois en nouvelles technologies sont réels : ceux de la menuiserie industrielle qui a vu ses parts de marchés sur les fenêtres chuter au profit du PVC et de l'aluminium en sont un exemple.

Cependant, il est possible actuellement d'augmenter les performances du matériau bois de différentes manières (Carrabin, 1991) :

- par des techniques de reconstitution et d'assemblage pour une plus grande homogénéité et de

meilleures résistances mécaniques (lamellé-collé, bois massifs reconstitués,...);

- par des techniques d'imprégnation pour augmenter la résistance aux attaques biologiques;
- par association avec d'autres matériaux (bois-alu, bois-plastiques, bois-verre ...).

D'autre part, la prise de conscience " écologiste " des consommateurs conduit à se préoccuper des conséquences industrielles sur l'environnement et la santé, de la fabrication à l'utilisation. A terme, le rejet des produits contenant des formaldéhydes, des matériaux de construction en PVC et des produits toxiques des traitements d'imprégnation, les nouvelles évolutions poussant à la mise au point de technologies et de matériaux " propres " modifieront les conditions de la concurrence du bois avec les autres matériaux, et en tant qu'" éco-matériau ", renouvelable et bio-dégradable, peu énergivore pour sa mise en oeuvre, le bois possède des atouts exceptionnels. A ce titre, on peut le considérer comme un matériau du futur. L'opposition croissante à l'importation de bois tropicaux, afin d'endiguer la déforestation chaotique des zones équatoriales (et le déficit de la balance commerciale) pousse également à s'intéresser à la ressource nationale. Mais pour cela, il faut impérativement améliorer ses qualités et diversifier ses utilisations.

Grâce aux recherches sur la torréfaction du bois, il a été mis en évidence et développé un procédé de réification du bois (brevets N° 85-18765 et N° 86-14138). En traitant par pyrolyse ménagée le bois, on réduit certains de ces inconvénients majeurs : reprise d'humidité, instabilité dimensionnelle, biodégradabilité. Ce traitement ouvre de nouvelles perspectives à l'utilisation du bois, par exemple en association avec des liants hydrauliques ou bien comme charge dans des composites, et offre une alternative intéressante aux actuels traitements de préservation qui utilisent des produits toxiques (créosote, Ammonium- Chrome-Arsenic,...).

C'est donc l'étude théorique et expérimentale du procédé d'obtention de ce matériau, appelé bois réifié, et la caractérisation de ces propriétés physico-mécaniques qui ont été l'objet de nos recherches dont cette thèse est le compte-rendu. Mais en premier lieu, il est nécessaire de décrire le matériau de départ, dont la complexité a poussé à la création d'une discipline scientifique à part entière, la science du bois.

I.2. ANATOMIE

L'arbre, source du bois, est avant d'être abattu, un être vivant dont les tissus cellulaires se sont organisés lors de sa croissance. Le bois proprement dit ou xylème est le matériau constitutif du tronc, des branches et des racines. C'est avant tout un matériau **anisotrope** et **hétérogène**. Sa structure peut être décrite à différents niveaux: à l'échelle macroscopique de l'arbre, microscopique des cellules, submicroscopique des parois cellulaires et moléculaire des polymères de base. Cette description doit tenir compte de la croissance naturelle de l'arbre et des hétérogénéités qui en résultent sur le bois. Nous ne rentrerons pas ici dans le détail de la description de l'anatomie du bois, développée en annexe I.

Comme le fait remarquer Bazhenov (1961) dans son étude de la piézoélectricité du bois et de ses symétries cristallines, on retrouve donc à tous les niveaux de description des caractères communs:

1/ une élongation dans la direction longitudinale

(tronc, cerne de croissance, cellule, fibrilles)

2/ une structure lamellaire

(tronc, cerne de croissance, cellule, fibrilles)

3/ toutes formes de croissance radiale

(rayons cellulaires et ponctuations)

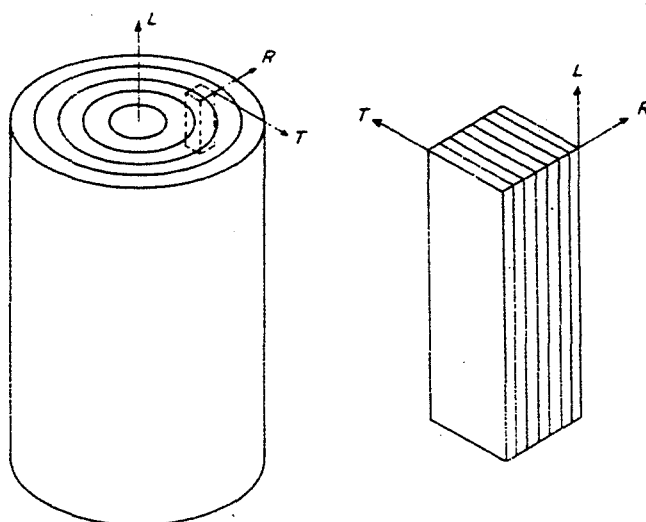


Figure I.4. Définition du repère d'orthotropie du bois

Ceci permet de définir un repère polaire caractéristique de la symétrie orthotrope cylindrique du bois (fig.I.4) et défini de façon macroscopique par :

L direction longitudinale (parallèle à l'axe du tronc)

R direction radiale (dans le sens de la croissance des cernes)

T direction tangentielle (tangente aux cernes de croissance)

ainsi que les trois plans ligneux correspondants (L, R), (L, T), (R, T).

A grande distance du centre, on peut négliger la courbure des cernes et considérer le repère comme cartésien.

Cette anisotropie n'est pas répartie de façon homogène. On s'aperçoit que si les propriétés physico-mécaniques varient peu le long de la hauteur du tronc, elles varient beaucoup le long de son rayon. Les cernes de croissance sont l'enregistrement année après années des conditions de croissance et cela explique la grande variation de la structure dans la direction radiale.

-----commentaires-----

Il est essentiel de retenir cela pour évaluer les résultats de toute recherche expérimentale sur les propriétés physico-mécaniques du bois. La forme et les dimensions d'un spécimen, l'emplacement de l'arbre où il a été prélevé auront une grande influence sur les propriétés mesurées. On peut noter comme facteurs d'influence la largeur des cernes de croissance, leur nombre, leur courbure, le pourcentage bois d'été/bois de printemps et la proportion de rayons ligneux.

Le souci de simplification nous fera considérer le bois comme macroscopiquement homogène et à symétrie orthotropique dans le volume de l'échantillon considéré (en prenant des précautions sur le choix des échantillons). Mais nous sommes conscients que la mesure sur quelques échantillons et quelques espèces ne permet pas d'étendre nos conclusions et de qualifier le bois de façon absolue. Nous pouvons à cet effet citer Zobel (1989):

" Même la spécification des noms scientifiques exacts ne garantit pas la constance des propriétés du bois d'une forêt à une autre, d'un pays à un autre. Ce sont en général les différences géographiques et l'environnement qui ont la plus grande influence sur l'individu d'une espèce donnée ."

I.3. COMPOSITION CHIMIQUE

La constitution chimique du bois est complexe et présente aussi une grande hétérogénéité (fig.I. 5) et la séparation des constituants est rendue difficile par leur étroite association dans les parois cellulaires. Le bois est principalement constitué par l'association de trois types de matériaux macromoléculaires: cellulose, hémicelluloses et lignines, qui s'organisent en structures complexes. A ces polymères s'ajoutent en part infime différents constituants moléculaires, très variés selon les espèces, minéraux, tannins, pectines, gommés, résines ..., mais qui peuvent avoir une influence sur ses propriétés physico-chimiques.

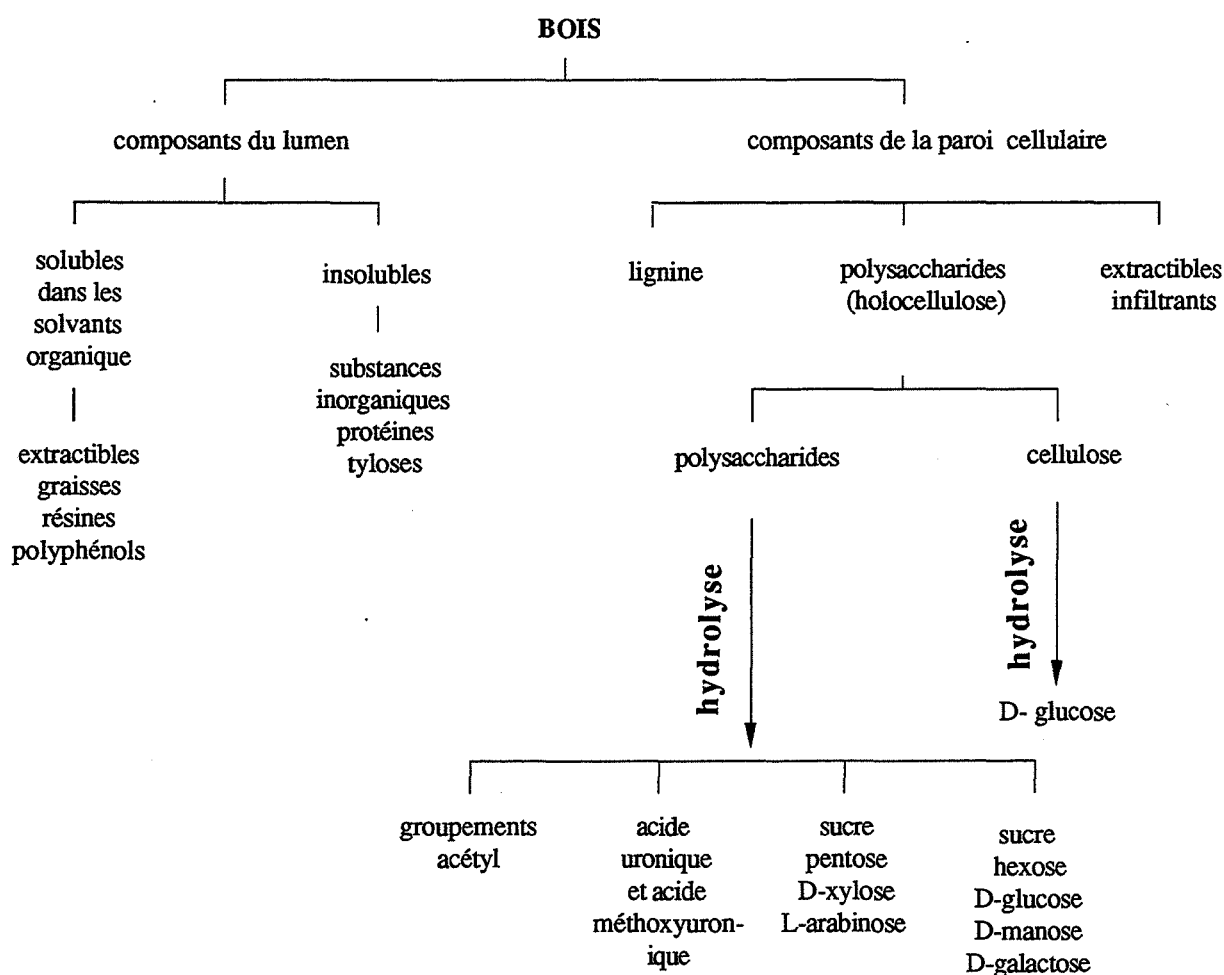


Figure I.5. Composition chimique du bois (d'après Browning, 1963)

I.3.1. Les différents constituants

I.3.1.1. La cellulose

C'est un polymère régulier de glucose se présentant en longues molécules linéaires de forme $(C_6H_{10}O_5)_n$, de conformation régulière et hautement orientées.

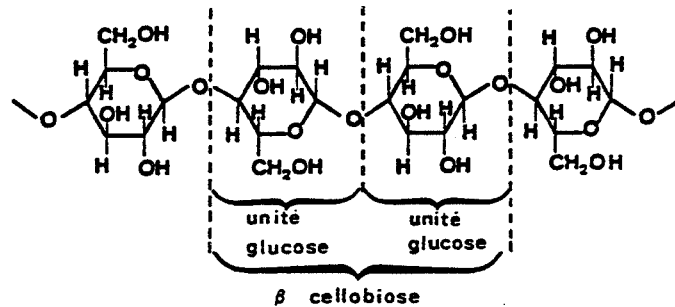


Figure I.6. Motifs de la chaîne cellulosique (d'après Sjöström, 1981)

L'existence de liaisons hydrogène entre des molécules adjacentes amène la cellulose à se présenter sous forme de longues microfibrilles, et lui confère une grande résistance chimique, thermique et mécanique. Le degré de polymérisation de la cellulose est élevé, et sa masse moléculaire varie entre 200.000 et 800.000.

La plupart de la cellulose se trouve sous forme cristalline (fig.I.7). Cependant, on rencontre à des intervalles d'environ 30 nm des régions amorphes.

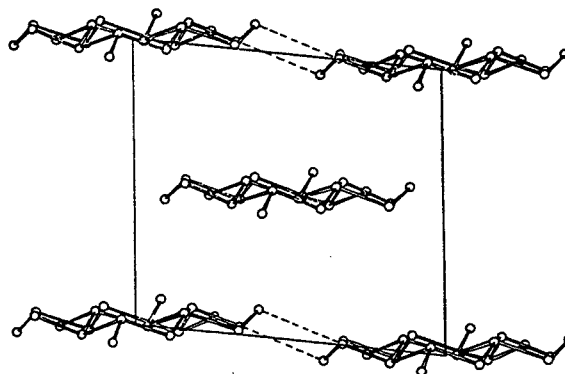


Figure I.7. Schéma de la maille cristalline de la cellulose (d'après Mark, 1980)

I.3.1.2. Les hémicelluloses

Comme la cellulose, ce sont des polysaccharides, mais à chaînes plus courtes et non nécessairement linéaires. Elles possèdent des propriétés hydrophiles et sont susceptibles de gonflements importants responsables de la variabilité dimensionnelle du bois. Ces hydrates de carbone peuvent être des xylanes, des pentosanes, des glucomannes... Ce sont principalement des oligomères de pentoses. Leur degré de polymérisation varie de 150 à 200. Les hémicelluloses des feuillus et des résineux diffèrent en formule chimique et en quantité (Joseleau, 1980). Les monomères des hémicelluloses des résineux sont principalement des mannoses, tandis que ceux des hémicelluloses des feuillus sont en majorité des xyloses.

I.3.1.3. Les lignines

De formule moyenne $(C_{10}H_{12}O_3)_x$, ce sont des polymères tridimensionnels complexes dont la structure, différente selon les résineux et les feuillus, n'est pas encore complètement élucidée, du fait de la difficulté à isoler la lignine sans la dégrader. La lignine des résineux est la lignine guaiacyl (polymérisation de l'alcool coniférylique) et celle des feuillus est la lignine guaiacyl-syringyl (co-polymère d'alcool coniférylique et synapylique).

On connaît ces motifs élémentaires:

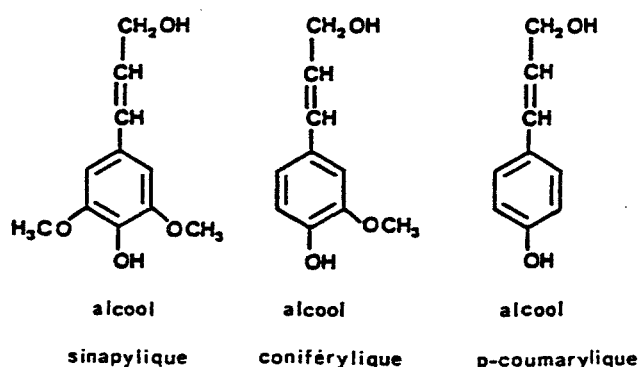


Figure I.8 . Motifs élémentaires de la lignine
(d'après Sarkanen & Ludwig, 1971)

Adler (1977) a proposé une structure pour une lignine de résineux:

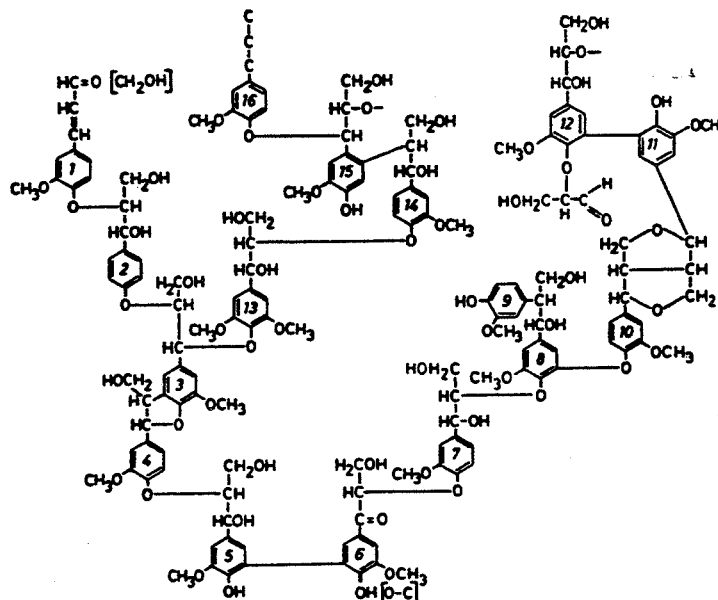


Figure I.9. Schéma constitutionnel d'une lignine de résineux
(d'après Adler, 1977)

Les lignines sont des polymères totalement amorphes. En solution, elles se présentent sous la forme d'un réseau tridimensionnel infini. Cependant, Goring (1989) fait remarquer que la lignine ne se présente pas sous la même forme dans les différentes zones de la paroi cellulaire. Dans la lamelle mitoyenne, elle forme un réseau tridimensionnel aléatoire, tandis que dans la paroi secondaire, elle se présenterait sous forme d'un réseau polymérique organisé bidimensionnel. D'autre part, le réseau diffère suivant les éléments morphologiques (fibres, rayons, vaisseaux) et les types de bois (feuillus et résineux). Monties (1980) a également étudié l'hétérogénéité des lignines, mais souligne que les variations de polydispersité ne s'accompagnent pas forcément de variations importantes des propriétés physico-chimiques.

I.3.1.4. Les extractibles

Ils varient énormément en quantité, type et distribution suivant les espèces. La plupart sont concentrés dans le lumen de la cellule, mais des quantités non négligeables sont présentes dans les parois cellulaires et le bois de coeur. Ils influent sur la densité du bois et peuvent modifier son

comportement physico-chimique (Hillis, 1975).

On remarque donc que les proportions des différents constituants varient beaucoup suivant les espèces. Ceci est particulièrement valable pour les hémicelluloses: les feuillus en sont beaucoup plus riches que les résineux (tab. I.2).

(%) CONSTITUANT	FEUILLUS	RESINEUX
LIGNINE	20	28
CELLULOSE	40	44
XYLANES	37	8
MANNANES	3	20

Tableau I.2. Pourcentages moyens des différents constituants
(d'après Jouseleau, 1980)

I.3.2. Organisation supramoléculaire

I.3.2.1. dans la microfibrille

Fengel (1971) a proposé un modèle de la structure supramoléculaire des constituants dans la paroi cellulaire. Il considère un groupe de 40 molécules de cellulose arrangées en motif régulier et reliées par des liaisons hydrogènes, qui constitue une fibrille élémentaire. Ces fibrilles élémentaires sont entourées par des hémicelluloses et forment des groupes de quatre "micelles" (fig.I.10). Les quatre micelles sont entourées de lignine et d'hémicelluloses et forment la microfibrille visible au microscope électronique (cf A1.4).

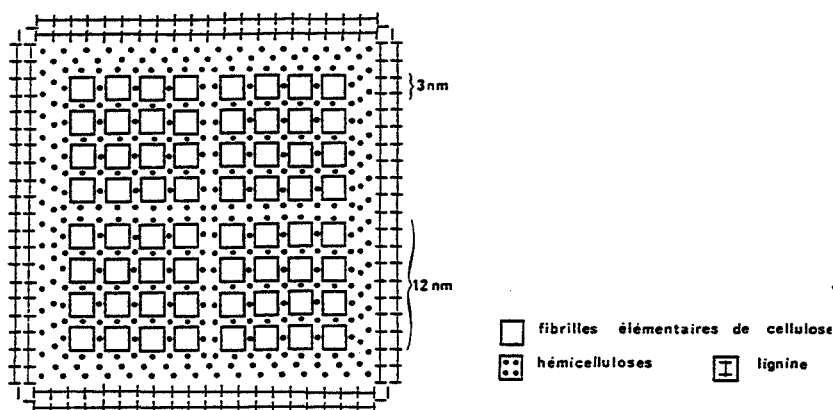


Figure I.10. Modèle proposé par Fengel (1971) pour une microfibrille

I.3.2.2. dans la paroi cellulaire

La composition chimique de la paroi cellulaire diffère suivant les couches considérées (fig.I.11). La première phase de la croissance de la cellule est la fabrication de la paroi primaire du matériau. En premier lieu se forment les microfibrilles de cellulose par polymérisation du glucose. Ensuite, sont produites les hémicelluloses qui entourent les microfibrilles. La lignine apparaît seulement au début de la croissance secondaire (Mariaux, 1983). Elle remplit d'abord les espaces intercellulaires et constitue la majorité (90 %) de la lamelle mitoyenne. La lignification, processus caractéristique uniquement des tissus de bois, n'a lieu que lorsque le treillis de microfibrilles semicristallines enrobé de polyoses est en place: c'est la phase de maturation cellulaire.

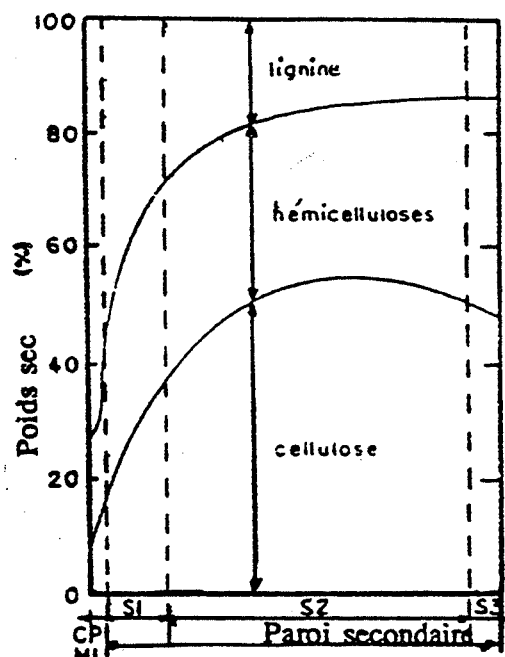


Figure I.11. Composition des couches de la paroi cellulaire

Takahashi et Koshijima (1988) ont mis en évidence des complexes lignines-carbohydrates et prouvé l'existence de liaisons physico-chimiques entre les deux constituants. Le renforcement de la structure cellulose-hémicellulose par la lignine augmente considérablement la résistance du bois, d'une part par la création de liaisons chimiques et d'autre part, par effet stérique, en provoquant le gonflement de la matrice et son " calage " entre les microfibrilles (Gril , 1988) .

Kerr et Goring (1975) ont proposé différents arrangements de la paroi cellulaire (fig.I. 12).

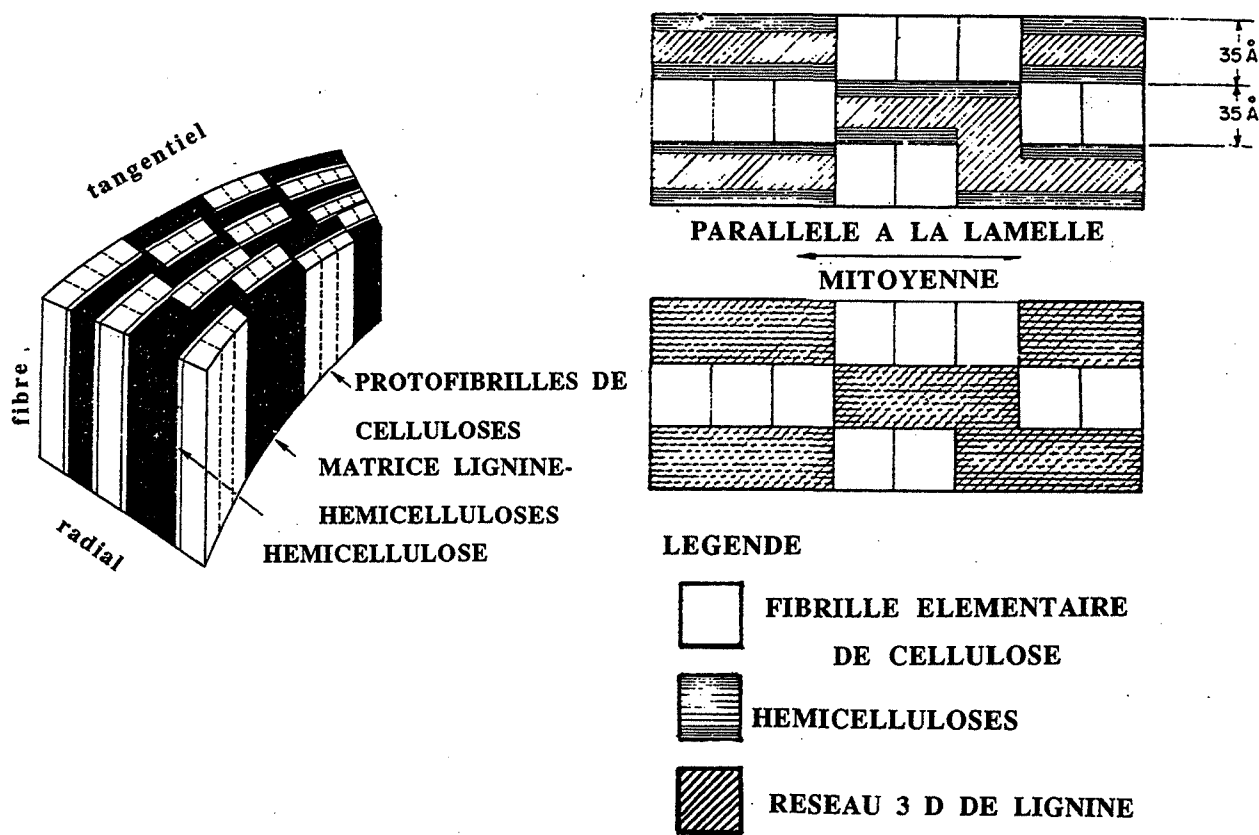


Figure I.12. Modèles de l'arrangement ultrastructural des composants dans la paroi

La maturation cellulaire permet aux différentes parties de l'arbre de s'adapter aux conditions de croissance par régulation des précontraintes. Ainsi, le cambium peut produire des cellules morphologiquement et chimiquement différentes appelées "bois de réaction" si le bois est soumis à des efforts en tension ou en compression (cas des branches).

-----commentaires-----

Suite à cette description, il nous parait important de faire quelques remarques:

- complexité de l'organisation composite tridimensionnelle de base: squelette fibreux cellulosique et matrice hémicelluloses - lignine (agent incrustant), dont on ne connaît pas encore précisément la nature des liaisons.

Les trois constituants sont étroitement liés et modifient mutuellement leurs propriétés : en

particulier, bien qu'un constituant soit amorphe en principe, sa liaison avec la cellulose peut amener une part d'orientation (ex : lignine dans la paroi secondaire).

- les propriétés du bois ne peuvent être déduites d'une combinaison des propriétés des constituants étudiés séparément pour deux raisons: difficulté d'extraction d'un constituant in-situ et influence de la structure supramoléculaire sur la molécule elle-même (effet stérique, liaisons chimiques et secondaires) .

I.4.LE BOIS:MATERIAU HYGROSCOPIQUE

Une des principales caractéristiques du bois, qui rend son utilisation et sa caractérisation délicates est son hygroscopie. Lorsqu'il est sur pied, l'arbre contient une certaine quantité d'eau qui circule en permanence et assure son fonctionnement physiologique. Le bois en tant que matériau va donc retenir un certain pourcentage d'eau, fonction de l'état d'équilibre avec les conditions climatiques de l'atmosphère environnante (température et humidité) .

D'un point de vue chimie des polymères, l'eau va jouer le rôle de plastifiant par sa combinaison avec les chaînes polymériques du bois. En se glissant entre les molécules, elle agit comme agent gonflant. D'autre part, les molécules d'eau agissent comme des " rotules " et augmentent les degrés de liberté et la mobilité des chaînes polymériques.

Dans toute étude du bois, il est donc indispensable de prendre en compte son taux d'humidité et les phénomènes de transport d'humidité qui le conditionnent .

I.4.1. L'eau dans le bois

L'eau peut se rencontrer dans le bois sous deux états physiques: l'eau dite libre et l'eau liée (Nous ne prenons bien sûr pas en compte l'eau de constitution, qui ne disparaît que lors d'attaques chimiques ou thermiques à partir des groupements -OH).

I.4.1.1. L'eau libre

Elle remplit les lumières des cellules du bois. Elle est retenue uniquement par des forces capillaires et n'intervient pas dans les phénomènes de retrait ou de gonflement.

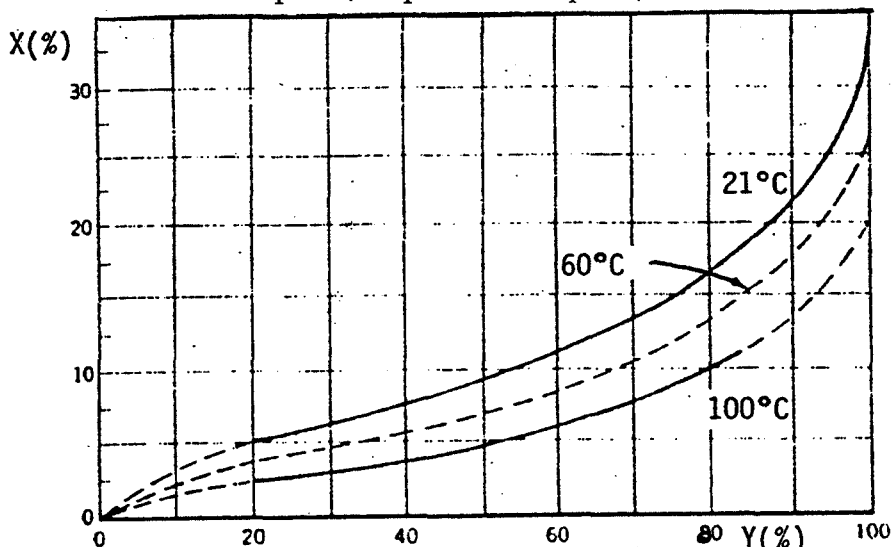
I.4.1.2. L'eau liée

Elle est fixée sur la matière ligneuse par des forces intermoléculaires agissant à l'interface fluide - solide par mécanisme de sorption. La sorption peut aller de l'adsorption physique (les molécules d'eau sont fixées à la surface solide par un champ de forces de nature électrostatique) à l'absorption chimique (il y a combinaison des molécules d'eau avec celles du solide pour former des hydrates cristallins).

Dans le cas du bois, l'eau est fixée au solide principalement par liaison hydrogène, de nature électrostatique et covalente entre l'atome d'hydrogène des groupements - OH des hydrates de carbone et l'oxygène, électronégatif, de l'eau. Elle se fixe en priorité sur les hémicelluloses, la cellulose étant moins hydrophile et la lignine étant de tous les composés du bois le plus hydrophobe.

I.4.1.3. Phénomènes de sorption

Les taux d'humidité du bois à l'équilibre en fonction de l'humidité de l'atmosphère, pour une température donnée définissent l'isotherme de sorption. Lorsque l'humidité du bois augmente pour s'équilibrer avec celle de l'atmosphère, on parle d'adsorption, dans le cas contraire, on parle de désorption.



Quelques points sont à noter :

* un phénomène d'hystérésis de sorption (adsorption et désorption ne suivent pas le même chemin, ce que certains expliquent par la dissipation d'énergie liée à la déformation de la matrice macromoléculaire, d'autres par la variation du nombre des sites disponibles)

- * une diminution du taux d'humidité d'équilibre avec la température (quelques % à 170°C)
- * une décroissance de l'hystérésis avec la température (elle disparaît à hautes températures).

Les différents constituants du bois n'ont pas le même comportement vis-à-vis de l'humidité. L'eau se fixe en priorité sur les hémicelluloses, la cellulose étant moins hydrophile et la lignine étant de tous les composés du bois le plus hydrophobe (fig.I.13).

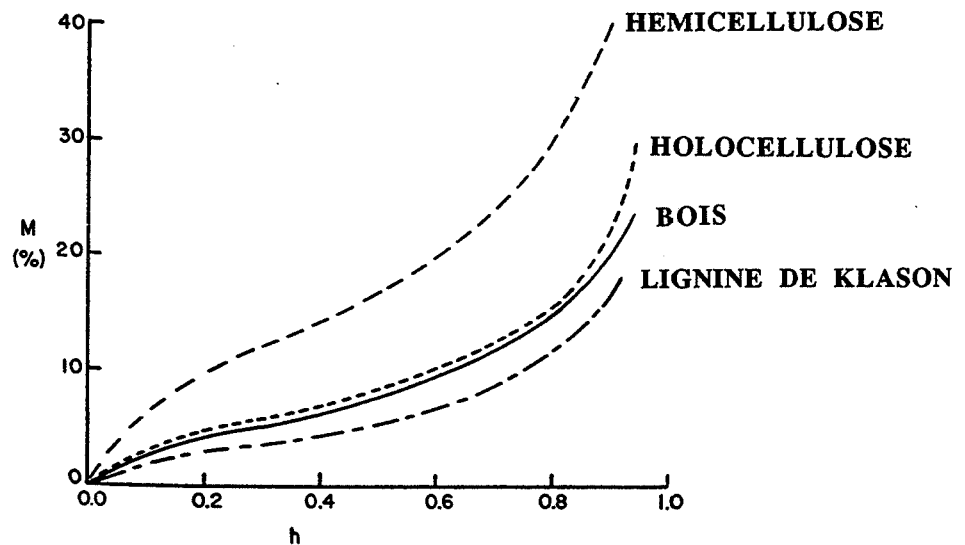


Figure I.13. Isothermes de sorption des différents constituants (d'après Skaar ,1988)

I.4.1.4. Le point de saturation des fibres

Il correspond au taux d'humidité X_{SF} pour lequel il ne subsiste plus d'eau en phase liquide dans les cavités cellulaires : l'eau est alors entièrement sous forme liée. Il varie entre 24 et 33 % (à 20 ° C) selon les espèces. On définit alors le domaine hygroscopique compris entre l'état anhydre et le bois à X_{SF} . Les variations dimensionnelles du bois ont seulement lieu dans ce domaine.

I.4.2. Phénomènes de transport de l'humidité

I.4.2.1. Migration de l'eau dans le domaine hygroscopique

D' un point de vue microscopique (Hillis,1975), l'eau migre préférentiellement durant le séchage de la paroi cellulaire à travers les régions amorphes des microfibrilles de cellulose et les interfaces d'hémicelluloses. Deux mécanismes sont à considérer pour étudier l'évolution de

l'humidité :

- le mouvement de la vapeur à travers les cavités cellulaires et les ponctuations;
- le mouvement de l'eau à l'état adsorbé à travers la paroi cellulaire, conséquence d'un gradient d'humidité (Stamm , 1967a ; Stamm, 1967b).

En première approximation, on admet que ces phénomènes sont régis par des lois de diffusion de Fick, exprimées en deux dimensions (on tient compte de l'anisotropie du bois, surtout marquée entre le sens transversal et le sens longitudinal) de la forme:

$$\begin{array}{ccc} \rightarrow & & \rightarrow \\ \phi = - (D) \text{ grad}H & & \end{array}$$

I.4.2.2. Migration de l'eau libre

Elle a lieu sous l'action d'un gradient de pression d'origine capillaire ou induit par l'augmentation de volume de gaz contenu dans les lumières des cellules avec une élévation de température.

I.4.2.3. Différences de comportement entre résineux et feuillus

La principale différence entre les résineux et les feuillus est la présence de vaisseaux ou pores dans les feuillus. L'amplitude relative du flux d'eau dans les feuillus est plus importante dans les vaisseaux que dans les autres éléments, tandis que dans les résineux, le chemin le plus facile pour la migration de l'eau est à travers les ponctuations (Basilico, 1985) .

Les résineux contiennent généralement plus d'eau que les feuillus. Ceci est dû au fait que, pour les feuillus, rayons, parenchymes et vaisseaux sont en partie ou en entier bloqués par des extractibles. De surcroît, dans le cas des résineux, ce sont pratiquement les trachéïdes seules qui conditionnent la circulation des fluides. Les résineux sont donc plus faciles à modéliser (un seul type d'élément cellulaire).

I.4 .3. Retrait et gonflement du bois

Dans le domaine hygroscopique, au cours d'un séchage (désorption) ou d'une reprise d'humidité (absorption), un échantillon de bois subit un retrait ou un gonflement. Ces phénomènes sont principalement dus au fait que, pour atteindre les sites de pontage hydrogène, une partie des molécules d'eau pénètre dans les parois cellulaires avec une affinité prépondérante pour les hémicelluloses avec pour conséquence un gonflement de la paroi cellulaire, tandis que lorsqu'elles s'en vont, celle-ci diminue de volume.

Les variations dimensionnelles du bois sont fortement anisotropes (fig.I.14). Les coefficients

de retrait linéaires, notés α_R (radial), α_T (tangential) et α_L (longitudinal) vérifient les inégalités:

$$\alpha_T > \alpha_R \gg \alpha_L$$

$$\alpha_T \cong 2 \alpha_R .$$

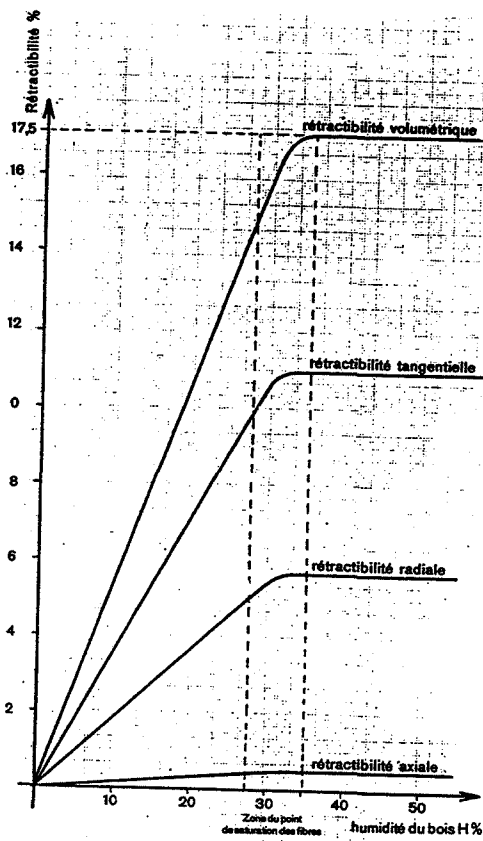


Figure I.14. Courbes des retraits (d'après Joly et More-Chevalier , 1980)

I.5 PROPRIETES PHYSICO-MECANQUES

I.5.1. Densité

La densité d'une substance homogène est définie comme le rapport de sa masse à son volume. Dans le cas d'un matériau hétérogène comme le bois, elle est influencée par les caractéristiques des éléments anatomiques qui le composent. La densité varie considérablement entre les espèces et ses valeurs peuvent aller de 120 à 1200 kg/m³ pour des porosités de 92% à 18%. D'autre part, l'humidité présente dans le bois influence également la densité en jouant à la fois sur sa masse et son volume. Il est également possible d'utiliser la densité relative, ou gravité spécifique, nombre sans dimension, rapport de la masse de l'échantillon à la masse en eau de son volume.

La densité d'un bois est le critère le plus sûr pour évaluer sa qualité. En effet, on a trouvé de nombreuses corrélations entre diverses propriétés (résistance à la rupture, retrait, dureté, module d'Young, etc...) et la densité. Cependant, il existe une grande dispersion sur la densité apparente: elle dépend de la structure interne du bois, de la position de l'échantillon sur l'axe de l'arbre, de sa distance par rapport au centre, de la présence et de la quantité d'extractibles ainsi que de la proportion de bois initial et de bois final. Il est ainsi courant de trouver des coefficients de variation autour de 10%.

La plus grande source d'hétérogénéité en densité se rencontre entre bois final et bois initial. Si l'on regarde une radiographie de cerne de bois (fig. I.15), on s'aperçoit que la densité varie plus ou moins continûment entre le bois de printemps et le bois d'été. Certains résineux (pin, sapin) présentent des profils de densité avec une transition abrupte .

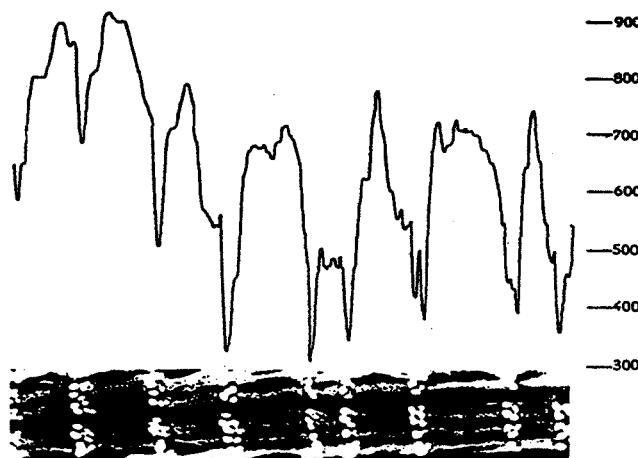


Figure I.15. Analyse par densitométrie rayons X d'un cerne de bois
(d'après Janin et Nepveu, 1980)

I.5.2 Propriétés mécaniques et rhéologiques

La mécanique est d'une façon générale l'étude de la réponse d'un matériau soumis à un champ externe de forces appliquées et l'analyse des relations entre les champs internes de contraintes et de déformations générées.

Les solides sont généralement considérés dans le cadre de la mécanique des milieux continus et par la théorie classique de l'élasticité où les relations entre champs de contraintes et de déformations sont supposées linéaires et indépendantes du temps. Cependant, les solides polymériques présentent en général une composante visqueuse non négligeable et leur étude, pour être complète, doit s'appuyer sur la rhéologie, c'est-à-dire l'étude des déformations et du flux de matière résultant de l'application de forces externes.

L'étude du comportement des matériaux a principalement deux objectifs : le premier est la caractérisation du matériau par une description complète de son comportement macroscopique. On parlera alors de rhéologie phénoménologique; le deuxième objectif est de déterminer la structure atomique ou moléculaire du matériau et les mécanismes responsables des phénomènes rhéologiques macroscopiques. A partir de cette structure moléculaire supposée, il s'agit de remonter au comportement mécanique global. On qualifie cette démarche de rhéologie moléculaire.

En fait, le comportement mécanique du bois va essentiellement dépendre des conditions dans lesquelles la charge lui est appliquée: un premier facteur très important est sa direction d'application. Du fait de son anisotropie structurelle, l'échantillon réagira très différemment suivant qu'il est sollicité dans le sens des fibres (soit à une échelle microscopique, dans le sens des chaînes cellulosiques) ou qu'il l'est perpendiculairement, avec une différence marquée entre direction radiale et tangentielle (du fait de l'existence de rayons ligneux dans la direction radiale qui renforcent la structure et d'une épaisseur de paroi différente dans la direction tangentielle). Le temps d'observation est également un facteur d'importance. Le comportement de poutres test en flexion sous charge constante montre un phénomène de fluage très marqué. N'oublions pas non plus le taux d'humidité, car l'eau se combine avec les chaînes polymériques du bois et abaisse leurs propriétés mécaniques. De plus, il existe un couplage entre la contrainte mécanique et le processus de sorption, désigné par Grossman (1976) sous le nom d' "effet mécanosorptif", effet qu'il suppose indépendant du temps et qui se traduit par une augmentation du fluage lors de la sorption, ou par une relaxation de la "pression de gonflement" lors de la relaxation de la contrainte qui s'exerce sur une pièce de bois dont la déformation est imposée.

Une augmentation de la température abaisse également les propriétés mécaniques du bois, mais souvent, comme elle s'accompagne également d'une diminution du taux d'humidité, son effet s'en trouve contrebalancé.

Dans le cas d'expériences de fluage en tension parallèle au fil du bois, Bach (1965) note :

* quand la contrainte, le taux d'humidité et la température sont suffisamment faibles, la relation entre déformation et contrainte est essentiellement élastique linéaire.

* à des valeurs intermédiaires de ces trois variables, le comportement est essentiellement viscoélastique linéaire

* à de hautes valeurs de ces variables, il apparaît non-linéaire (viscoélastique et/ou plastique).

II.5.2.1. Modélisation micromécanique

Cette approche, à rapprocher de la rhéologie moléculaire, vise à relier le comportement élastique, ou viscoélastique macroscopique à des données relatives à l'ultrastructure de la cellule. Parmi ceux qui ont étudié et modélisé le comportement mécanique de la paroi cellulaire, nous pouvons citer Mark (1967), Schiewind (1980) et Navi (1988). La paroi est considérée comme un stratifié constitué de couches successives de fibres cellulosiques enrobée d'une matrice isotrope de lignine et l'angle des renforts cellulosiques avec l'axe de la cellule varie entre P, S1, S2 et S3. Ces études ont montré l'influence prépondérante de l'angle moyen des microfibrilles de la paroi S2 sur le comportement longitudinal.

Cette influence est importante également dans le comportement viscoélastique (Salmen et al., 1985, Ono et Norimoto, 1985) et l'anisotropie du comportement élastique se retrouve dans le comportement viscoélastique. La très forte anisotropie élastique du réseau microfibrillaire serait en partie compensée par une plus grande viscosité de la matrice dans la direction des microfibrilles (Poliszko, 1984). Cette approche a également été adoptée pour expliquer le comportement visco-hygro-élastique du bois (Gril, 1988) ou modéliser le retrait de la paroi (Cave, 1972, Barrett, 1973).

Ces approches nécessitent une masse considérable de données anatomiques, structurales et mécaniques difficilement accessibles et très dispersées, afin de qualifier les constituants du bois aux échelles de modélisation: le micron pour la paroi cellulaire, 100 microns pour la fibre, quelques millimètres pour le cerne de croissance, le centimètre et plus pour le bois massif sans défaut. Elles sont donc d'une utilité pratique limitée, bien que très enrichissantes du point de vue de la compréhension du comportement du matériau.

II.5.2.2. Elasticité linéaire dans le repère d'orthotropie

Pour des raisons de simplification, on a été amené à modéliser le tronc "idéal" par un milieu continu, homogène. Les symétries du plan ligneux ont amené les auteurs à considérer le bois comme un matériau orthotrope cylindrique. L'étude des propriétés piézoélectriques a permis de montrer que le bois possède la symétrie d'un système orthorombique (Bazhenov, 1961, Le Govic

et al., 1986), mais cela ne change rien par rapport à la symétrie orthotropique dans l'expression des coefficients des tenseurs de rigidités .

Les hypothèses émises en 1948 par Hearmon ont été reprises par tous les auteurs traitant de mécanique du bois :

- * il existe localement trois plans de symétrie pour la structure (orthotropie);
- * pour un arbre assimilé à un cylindre, on admet qu'en tout point, les plans de symétrie sont les plans L-R , L-T et R-T .

Les lois de comportement vont donc être celles des matériaux orthotropes. Dans des essais mécaniques statiques (traction ou compression axiales), on observe un domaine de réponse linéaire du bois (jusqu'à 60-70% de la contrainte maximale à la rupture en traction et 30 à 50 % en compression) (fig .I.16).

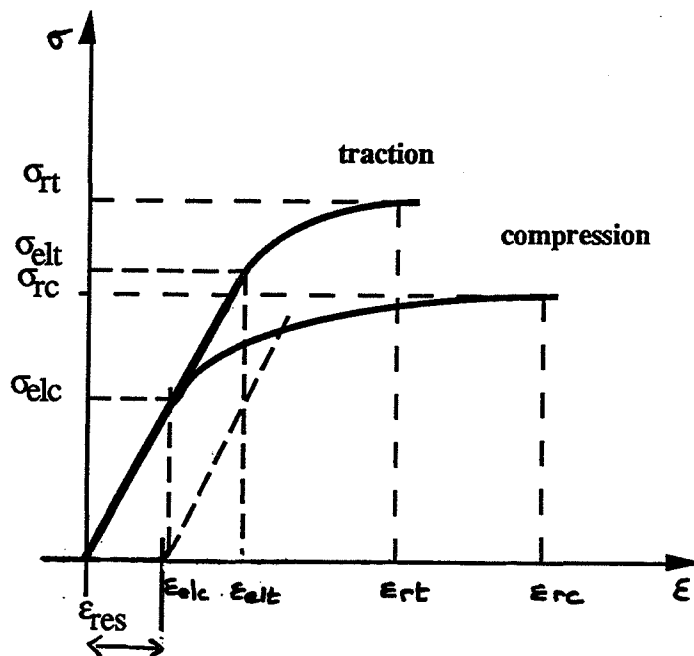


Figure I.16. Diagramme contrainte - déformation du bois (d'après Guitard, 1987)

Pour des niveaux faibles de contraintes et de courtes périodes de temps, dans des conditions constantes d'humidité et de température, le bois peut donc être considéré comme un matériau élastique. En notation tensorielle, les lois de comportement s'écriront :

$$\epsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl}$$

ou

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \epsilon_{kl}$$

Dans le repère d'orthotropie (L, R , T), elles peuvent s'écrire sous forme matricielle (fig.I.17) et la caractérisation complète du comportement nécessite la connaissance de neuf constantes indépendantes (Hearmon, 1948, Kollmann et Côté, 1968, Bodig et Jayne, 1982, Hadj Hamou, 1985).

$$\begin{vmatrix} 1/E_L & -\nu_{RL}/E_R & -\nu_{TL}/E_T & 0 & 0 & 0 \\ -\nu_{LR}/E_L & 1/E_R & -\nu_{TR}/E_T & 0 & 0 & 0 \\ -\nu_{LT}/E_L & -\nu_{RT}/E_R & 1/E_T & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1/G_{RT} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G_{LT} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G_{LR} \end{vmatrix}$$

Figure I.17. Matrice des souplesses (exprimées avec l'aide des constantes techniques)

Les coefficients de Poisson vérifient les inégalités suivantes :

$$\nu_{RT} > \nu_{LT} > \nu_{LR} \equiv \nu_{TR} \gg \nu_{RL} > \nu_{TL}$$

Le couplage le plus important s'observe dans le plan radial-tangentiel. Le plan (L,R) qui contient les fibres et les rayons ligneux est le plus rigide au cisaillement tandis que le plan (R, T) ne possédant pas d'éléments de renfort, si ce n'est la matrice ligneuse, est le plus souple au cisaillement (Dinwoodie, 1975).

MODULE (10 ² MPa)	E _L	E _R	E _T	G _{RT}	G _{TL}	G _{RL}
FEUILLU (ρ = 650)	141	20,4	8,7	5	9,8	18,5
RESINEUX (ρ = 500)	170	8	6	0,4	6,4	8,7
COEF. DE POISSON	ν _{RT}	ν _{LT}	ν _{LR}	ν _{TR}	ν _{RL}	ν _{TL}
FEUILLU	0,67	0,46	0,39	0,38	0,05	0,03
RESINEUX	0,51	0,43	0,39	0,31	0,03	0,02

Tableau I.3. Valeurs des constantes techniques du bois pour un feuillu et un résineux standard (d'après Dinwoodie, 1975)

I.5.2.3. Viscoélasticité

Si le formalisme précédent est généralement valable pour exploiter les résultats des tests statiques, on observe qu'au bout de dix ans, toutes les poutres chargées sous force constante en flexion ont rompu à 60% de la charge maximale à la rupture. Cette dépendance des propriétés mécaniques avec le temps montre que le bois est un matériau viscoélastique. L'application d'une charge sur un matériau viscoélastique entraîne initialement une déformation élastique instantanée suivie par une période de déformation retardée sous charge constante. Au bout d'un temps infini, le matériau peut présenter une déformation plastique permanente, due au flux visqueux du matériau. Ce phénomène est désigné sous le terme de fluage.

Quand le matériau est soumis au temps t_0 à une déformation instantanée, maintenue constante par ajustement de la charge, on s'aperçoit que la charge requise pour maintenir la déformation décroît avec le temps : ce phénomène est désigné sous le terme de relaxation.

On définit à partir de ces deux types d'expériences une fonction de fluage :

$$J(t) = \frac{\varepsilon(t)}{\sigma_0}$$

et une fonction de relaxation :

$$G(t) = \frac{\sigma(t)}{\varepsilon_0}$$

L'étude de la rhéologie du bois a été faite entre autres par Schiewind (1968) et Pentoney et Davidson (1969). Schiewind et Barrett (1972) proposent de considérer le bois comme un matériau orthotrope viscoélastique linéaire. Pour des niveaux de contraintes situés dans le domaine linéaire, les équations constitutives s'écrivent alors (Halpin et Pagano, 1968) :

$$\varepsilon_{ij}(t) = \int_{-\infty}^t S_{ijkl}(t-\theta) \cdot \frac{d\sigma_{kl}(\theta)}{d\theta} \cdot d\theta$$

ou

$$\sigma_{ij}(t) = \int_{-\infty}^t C_{ijkl}(t-\theta) \cdot \frac{d\varepsilon_{kl}(\theta)}{d\theta} \cdot d\theta$$

où les S_{ijkl} sont les complaisances de fluage et les C_{ijkl} les rigidités ou modules de relaxation.

Du fait de la symétrie orthotrope, seules neuf de ces composantes sont nécessaires pour caractériser entièrement le comportement. Schiewind et Barrett (1972) ont, à partir d'expériences de fluage, déterminé des fonctions de fluage de la forme $J(t) = J_0 + m t^n$. D'autres auteurs

(Genevaux et Guitard, 1988, Foudjet, 1986, Bodig et Jayne, 1982) ont cherché à expliquer la viscoélasticité du bois en ayant recours à des modèles combinant des ressorts (modélisant le comportement d'un solide de Hook de module E) et des amortisseurs (modélisant le comportement d'un liquide newtonien de viscosité η). Lorsque le nombre des éléments tend vers l'infini, on définit alors une distribution continue (spectre) des temps de retard. Les expériences montrent que le bois présente une distribution presque uniforme des temps de retard sur l'échelle des temps d'observation courants dans les expériences.

La dépendance des propriétés avec le temps s'accompagne d'une dépendance par rapport à la température, et également par rapport à la concentration en plastifiant, rôle que joue l'eau dans le cas du bois. Une température élevée a un effet similaire à un chargement longue durée sur le fluage et augmente la déformation résiduelle. Mais pour mieux expliquer cela, nous allons rappeler une propriété fondamentale des polymères: la transition vitreuse.

I.5.2.4 Transition vitreuse des différents constituants du bois

La plupart des polymères, qu'ils soient semi-cristallins ou totalement amorphes, présentent à des températures assez bien déterminées, en-dessous de la température de fusion, des variations brutales de nombreuses propriétés telles que : le volume spécifique, le coefficient de dilatation thermique, la chaleur spécifique, le module mécanique (Champetier et Monnerie, 1969). La température à laquelle se produisent ces variations est appelée température de transition vitreuse T_v ou température de ramollissement (softening point).

En-dessous de T_v , le polymère est dur et cassant: il est dans son état vitreux. Au-dessus, il se déforme beaucoup plus sous contrainte et présente un caractère plastique plus marqué: c'est l'état caoutchoutique. Le phénomène de transition vitreuse est essentiellement un phénomène cinétique: il correspond à des modifications des degrés de liberté dans les mouvements des chaînes macromoléculaires situées dans les parties amorphes du polymère (les polymères cristallins n'ont pas de transition vitreuse).

Aux très basses températures, les macromolécules se trouvent figées les unes auprès des autres; les seules libertés de mouvement correspondent aux oscillations de plus ou moins grande amplitude des atomes autour de leurs positions moyennes d'équilibre: la substance est dure, fragile. Quand T augmente, l'amplitude des oscillations augmente et lorsque T_v est atteinte, l'énergie apportée est suffisante pour que les macromolécules se déforment localement par rotation autour des liaisons covalentes. Ces mouvements microbrowniens peuvent toucher un ou plusieurs motifs monomères ou substituants.

Au-dessus de T_v , les possibilités de repliement et d'extension des macromolécules se manifestent par des phénomènes de très grande élasticité dans les polymères amorphes, ainsi que

par des phénomènes de fluage correspondant à de la plasticité (apparition d'une déformation permanente sous charge) pour les polymères semi-cristallins. La présence de liaisons hydrogène inter ou intramoléculaires accroît T_v , tandis que les ramifications l'abaissent. La température de transition est également abaissée par addition de substances appelées plastifiants qui, en s'insérant entre les chaînes et en les écartant, affaiblissent les interactions moléculaires.

Les différents comportements mécaniques observés en fonction de la température se retrouvent lorsqu'on examine à une température déterminée l'influence du temps d'application des efforts sur les propriétés mécaniques: il s'agit de l'équivalence temps - température. (fig.I.18).

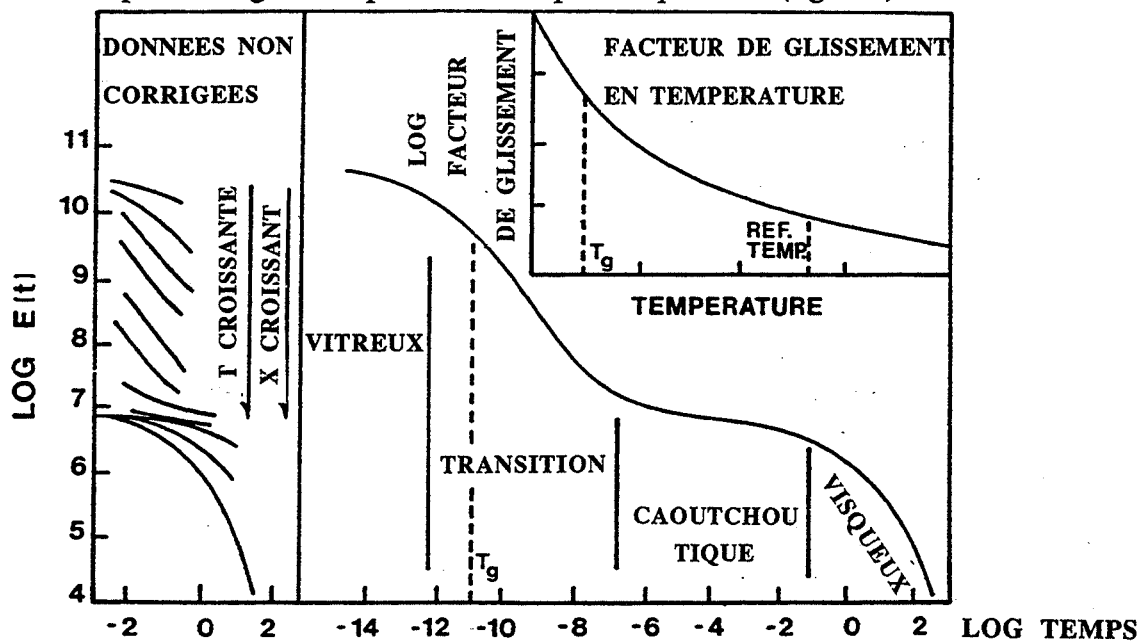


Figure I.18. Equivalence temps - température (d'après Wolcott, 1990)

Goring (1963) a été un des premiers à étudier les températures de transition vitreuse des différents constituants du bois. La méthode expérimentale choisie pour la mettre en évidence consiste à comprimer des échantillons de poudre dans un capillaire de verre sous charge constante et à température croissante. Chow et Pickles (1971) ont également étudié par le même dispositif les températures de transition du bois et de l'écorce. Ils ont couplé cette étude avec de l'analyse thermique différentielle et des analyses infrarouges et aux rayons X. La température de transition vitreuse pour le bois sec et l'écorce a lieu dans la plage 180 °C - 200 °C, mais ce domaine de températures correspond également au début des réactions de décomposition du bois, ce qui rend délicate la définition d'une température de transition puisque le matériau n'est pas stable chimiquement.

De façon générale, la transition vitreuse des constituants du bois a surtout été étudiée dans le contexte de la fabrication du papier ou de la mise au point de composites thermopressés (Wolcott et al., 1990). Back et Salmen (1982) passent en revue les résultats sur les températures de transitions des différents constituants et commentent les dispersions:

* *Cellulose (polymère semi-cristallin)*

Les variations peuvent être dues à des différences dans le degré de cristallinité, dans les procédures expérimentales et leur échelle de temps ou à des définitions différentes de la température de transition.

* *Hémicelluloses*

Les variations résultent de différences dans la composition chimique et la configuration, en particulier des groupes latéraux.

* *Lignines*

Les variations s'expliquent par les problèmes soulevés pour leur isolation qui peut altérer considérablement la structure chimique et physique.

Pour les lignines et les hémicelluloses, la présence d'humidité abaisse considérablement les températures de transition et accentue la transition, illustrant ainsi son rôle de plastifiant. La présence d'eau affecte surtout la température de transition des hémicelluloses qui peut atteindre la température ambiante. La lignine atteint un état d'équilibre au-delà duquel sa température de transition n'est plus affectée. Elle se stabilise alors aux alentours de 115° C. Par contre, le point de ramollissement de la cellulose semi-cristalline est très peu affecté par la reprise d'humidité.

Dans le comportement du bois, les caractéristiques des matériaux isolés n'apparaissent pas avec netteté. Il tend à se ramollir à des températures supérieures à 200 ° C. Comme le bois est un mélange hétérogène de cellulose, d'hémicelluloses et de lignine, son comportement est conditionné par les arrangements morphologiques et les interconnexions chimiques entre les composants qui tendent à réduire les mouvements des macromolécules. La cristallinité de la cellulose restreint les effets de la transition vitreuse et les variations du module avec la température sont faibles comparées à d'autres polymères.

Le comportement du bois sec est différent le long des fibres et perpendiculairement aux fibres. Dans le cas extrême d'un couplage en parallèle des différents polymères, le module élastique global dépend du composant le plus rigide, soit dans le sens des fibres, de la cellulose; dans l'autre extrême d'un couplage en série, le module dépend plus ou moins du composant le plus souple et commence à décroître quand un des composants passe sa température de transition. Par conséquent, la décroissance la plus importante du module aura lieu dans le sens perpendiculaire aux fibres. Poliszko (1984) dans une étude en analyse thermomécanique différentielle (flexion dynamique sous température croissante) a étudié les réponses dans les directions parallèle aux fibres et perpendiculaire pour différents taux d'humidité. Il trouve un facteur 7 entre les diminutions de module dans ces directions.

Irvine (1984), Kelley et al. (1987) ont utilisé l'analyse thermomécanique dynamique et l'analyse thermique différentielle pour déterminer les températures de transition du bois. Une transition à basse température entre -90° C et -110° C, attribuée à des transitions secondaires

associées à des échanges de sites d'humidité, une large transition centrée autour de la zone de 80° C à 100° C et une plus faible entre 10 et 60 ° C ont été identifiées. Les pics de la tangente de l'angle de perte en fonction de la température ont été attribués aux transitions vitreuses des hémicelluloses et de la lignine. Kelley et al. ont vérifié l'équivalence temps-température de Williams-Landel-Ferry entre T_g et $T_g \pm 85$ ° C. De même, Le Govic et al (1987) mettent en évidence une équivalence temps-température s'appliquant au fluage du bois.

Hillis et Rozsa (1978) ont étudié le ramollissement du bois par la mesure de la vitesse de rotation autour de son axe d'un échantillon de bois soumis à un couple de torsion et une vitesse de chauffe constants. Ils observent des zones de changements du module de torsion entre 70 et 80° C, puis entre 140° et 180 ° C pour des échantillons secs.

Les zones de transition vitreuses des différents constituants sont données dans le tableau I.4 .

AUTEUR	ZONE	TRANSITION	VITREUSE
	cellulose	lignines (sèches)	hémicelluloses (sèches)
Goring	231-245 °C	134-235 °C	167-217 °C
Back	200-250 °C	135-205 ° C	150-220 °C
Hillis	231-244 °C	127-193 ° C	167-181 °C

Tableau I.4. Transitions vitreuses des différents constituants du bois

-----commentaires-----

Comme nous avons pu le voir dans les pages précédentes, le comportement mécanique du bois, matériau inhomogène, discontinu et fortement anisotrope, est complexe et dépend beaucoup des conditions d'environnement telles que la température et l'humidité. Huet (1988) le définit comme thermo-hygro-viscoélastique et développe une formulation tensorielle correspondante. Il faut donc bien tenir compte des conditions d'un essai de caractérisation mécanique, car suivant ces conditions, la réponse d'une pièce de bois à une sollicitation peut être très différente .

D'autre part, la variabilité des caractéristiques du bois est importante et a plusieurs origines: différences entre essences, reliées à des différences de composition chimique et d'organisation cellulaire, différences au sein d'une même espèce, car chaque arbre est un " individu" et par conséquent, se distingue plus ou moins de son voisin, différences au sein d'un même arbre suivant la position dans le tronc, la courbure des cernes, la présence éventuelle de défauts (noeuds, distorsion de fil, présence de bois de réaction).

Ceci a une conséquence sur le plan pratique : pour réaliser des expériences, qui, si elles se veulent scientifiques, doivent être reproductibles, il faut prendre garde au choix des échantillons et

à leur conditionnement en température et humidité. D' autre part, les données ne peuvent être interprétées que sur un large nombre d'échantillons et moyennant un traitement statistique.

Du point de vue de la modélisation, étant donné l'incertitude systématique introduite par la complexité et la variabilité du matériau, nous jugeons le modèle viscoélastique linéaire orthotrope largement suffisant: il implique déjà la détermination de 18 constantes réelles (9 complexes) pour une caractérisation complète du comportement. Il est bon cependant de connaître la réalité du comportement du bois afin d'éviter de se placer dans des conditions où la linéarité n'est plus vérifiée.

I.5.3. Propriétés thermiques du bois

Le bois est un matériau poreux et présente de très bonnes propriétés isolantes. Ainsi, contrairement à l'opinion couramment répandue de sa fragilité au feu, le bois en structure tient plus longtemps lors d'un incendie que les charpentes métalliques du fait de ses faibles conduction et dilatation thermiques.

I.5.3.1. Dilatation thermique

Comme toutes les propriétés du bois, les coefficients de dilatation thermique dépendent de la direction selon les rapports d'anisotropie déjà observés (Tab.I.5). Le coefficient de dilatation thermique est très faible dans la direction L à cause des microfibrilles cristallines de cellulose. Les coefficients augmentent légèrement avec la température.

essence	densité (kg/m ³)	$\alpha_T \cdot 10^6$ (0 à 50 °C)	$\alpha_R \cdot 10^6$ (0 à 50 °C)	$\alpha_L \cdot 10^6$ (0 à 50 °C)
peuplier	430	31,4	27,2	3,6
douglas	510	45,0	27,1	3,5

Tableau I.5. Valeurs des coefficients de dilatation thermique dans les directions principales du bois (d'après Kollmann et Côté, 1968)

Les variations dimensionnelles dues aux différences de températures sont en général faibles par rapport aux variations dimensionnelles dues aux variations d'humidité et par conséquent, elles sont dans la plupart des cas négligées.

I.5.3.2 Capacité calorifique du bois (ou chaleur spécifique)

Dunlap (1912) a déterminé empiriquement la dépendance de C avec la température θ pour la matière ligneuse anhydre selon la relation :

$$C_{p \text{ bois}} = 1,112 + 0,00484 \theta \quad (\text{J/g}^\circ\text{C})$$

La chaleur spécifique moyenne entre 0° et $\theta^\circ\text{C}$ vaut :

$$C_m = \frac{1}{\theta} \int_0^\theta C(T) dT$$

soit entre 0° et 100°C , une valeur moyenne de $1,35 \text{ J/g}^\circ\text{C}$.

La chaleur spécifique dépend du taux d'humidité. Si on néglige la chaleur spécifique de la phase gazeuse et l'accroissement apparent de la chaleur spécifique de l'eau adsorbée, la chaleur spécifique du bois humide se calcule par une loi des mélanges :

$$C_p = \frac{X C_{p \text{ eau}} + C_{p \text{ bois}}}{1 + X}$$

I.5.3.3 Conductivité thermique

Elle varie avec la direction du flux de chaleur par rapport aux fibres, avec la densité, avec le taux d'extractibles, avec les défauts et surtout avec l'humidité. La conductivité du bois est fortement anisotrope et la conductivité dans le sens des fibres vaut environ 2,5 la conductivité dans le sens perpendiculaire.

Maku (1954) a établi empiriquement une relation entre λ et la densité anhydre :

$$\lambda_{\perp} = 0,023 + 0,084\rho_0 + 0,108 \rho_0^2 \quad (\text{J/ms}^\circ\text{C})$$

Il a calculé la conductivité de la substance ligneuse ($\rho^* \cong 1,5$) dans la direction longitudinale $\lambda_{\parallel} = 6,52 \text{ J/ms}^\circ\text{C}$ et dans la direction perpendiculaire $\lambda_{\perp} = 0,42 \text{ J/ms}^\circ\text{C}$.

En fait, la conductivité d'une matière fibreuse dépend de la direction du flux de chaleur par rapport aux fibres. Il existe deux cas limites: le cas a/ d'un arrangement en parallèle des fibres dans la direction du flux, où λ est maximale et le cas b/ d'un arrangement en parallèle dans le sens perpendiculaire aux fibres où λ est minimale (fig.I.19).

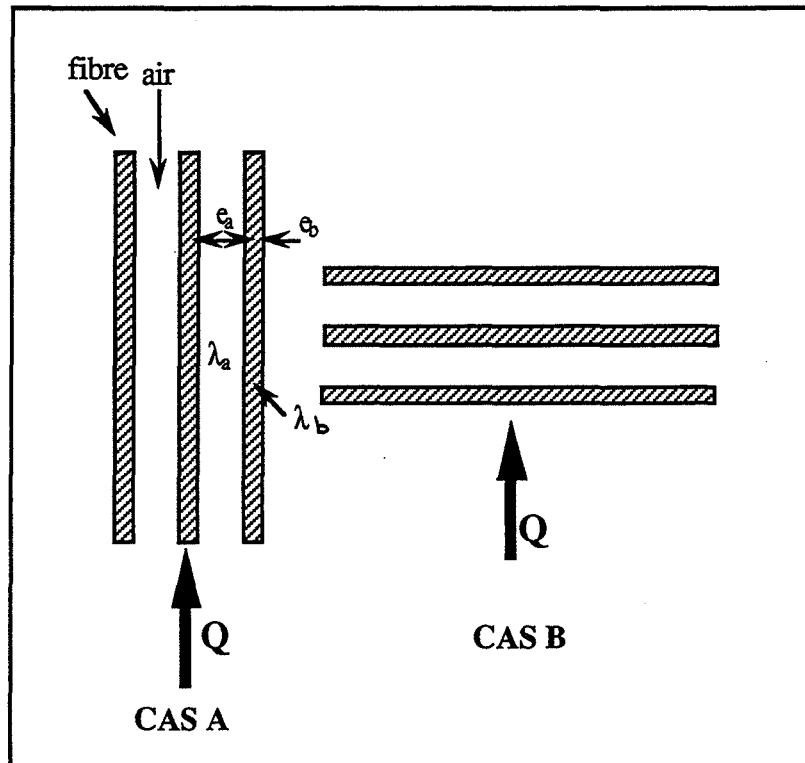


Figure I.19. Schéma de l'arrangement des fibres

La conductivité thermique λ est donc comprise entre λ_{\min} et λ_{\max} et leurs valeurs sont données par :

$$\lambda_{\min} = \frac{\lambda_a \cdot \lambda_b}{\lambda_b - \frac{\rho}{\rho_b} (\lambda_b - \lambda_a)}$$

et

$$\lambda_{\max} = \lambda_a + \frac{\rho}{\rho_b} (\lambda_b - \lambda_a)$$

La conductivité thermique du bois dépend de l'humidité. De nombreuses relations empiriques ont été proposées, mais aucune ne donne entièrement satisfaction et elles se limitent au domaine de l'eau liée (0 - 35 %).

Charuel et al. (1980) proposent à partir de résultats expérimentaux les relations suivantes :

$$\lambda_{\perp} = 0,189 X + 0,0987 \quad (\text{pour du sapin de densité anhydre } 408 \text{ kg/m}^3)$$

et

$$\lambda_{\perp} = 0,325X + 0,152 \quad (\text{pour du chêne})$$

La conductivité thermique varie également avec la température et Spolek (1981) trouve que sur la plage 0°C - 200 ° C et pour une humidité supérieure au point de saturation des fibres, la conductivité thermique augmente avec T puis diminue à partir de 120 ° C selon l'humidité, mais varie au plus de 14 %.

I.5.3.4. Diffusivité thermique du bois

Le tableau I.6 donne une idée de la dépendance de a avec la densité et le taux d'humidité , on remarque qu'en fait, la diffusivité varie peu en fonction de la densité et de l'humidité.

ρ_0 (kg/m ³)	X (%)	ρ_H (kg/m ³)	C (J/kg°C)	λ_{\perp} (J/ms°C)	a_{\perp} (10 ⁻⁶ m ² /s)
400	10	427	1609	0,107	0,15
	20	451	1822	0,121	0,15
	30	480	2006	0,133	0,14
	50	540	2295	0,160	0,13
	100	720	2767	0,226	0,11
600	10	627	1609	0,143	0,14
	20	657	1822	0,162	0,14
	30	690	2006	0,180	0,13
	50	776	2295	0,216	0,12
	100	1030	2767	0,307	0,10

Tableau I.6. Diffusivité thermique transversale en fonction de la densité et de l'humidité
(d'après Kollmann et Côté, 1968)

CHAPITRE SECOND

ETUDE EXPERIMENTALE ET THEORIQUE DU TRAITEMENT DE RETIFICATION

INTRODUCTION

Nous allons dans ce chapitre étudier le procédé de réтификаtion du bois. Il fait suite au procédé de torréfaction, et s'en distingue par des températures de traitement plus faibles et un matériau de base qui peut être massif. Son optimisation se conçoit par l'étude approfondie des mécanismes réactionnels en relation avec les conditions du procédé et surtout, les propriétés physico-mécaniques du produit final. Pour l'étude proprement dite du procédé, nous avons choisi de suivre deux voies en parallèle: expérimentation et modélisation. Nous nous sommes placés dans des conditions opératoires simplificatrices, en isotherme, et nous avons étudié uniquement une géométrie cylindrique. Notre modèle prend en compte: le processus physique de conduction, la vaporisation de l'eau dans le bois, la décomposition d'Arrhénius du bois actif en volatils, ainsi qu'une densité, un taux d'humidité, une conductibilité thermique et une capacité calorifique variables. La formulation du problème est basée sur un système d'équations aux dérivées partielles paraboliques non-linéaires couplées, résolu itérativement par une méthode aux différences finies. Les résultats obtenus par le modèle montrent, en comparaison avec l'expérience, l'importance du taux d'humidité et de la conduction pour une pyrolyse à basses températures. Le but final de ce modèle est la détermination du temps nécessaire pour un traitement du bois dans toute l'épaisseur et à terme, l'ajustement des paramètres du procédé.

II.1. RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES

II.1.1. Généralités

L'idée de stabiliser dimensionnellement le bois par voie thermique n'est pas nouvelle et c'est aux Etats-Unis qu'elle a vu le jour pour la première fois (White, 1944). Stamm (1946) a également breveté un produit appelé Staybwood, mais il ne fut jamais commercialisé à cause de la dégradation trop importante des propriétés mécaniques. Les travaux de Burmester (1974) et Giebeler (1983) montrent qu'en Allemagne également, l'idée de stabiliser thermiquement le bois a été explorée. Ces traitements se font généralement sous vapeur.

Nous allons passer rapidement en revue les moyens de stabiliser dimensionnellement le bois tels qu'ils furent classés par Stamm (1962):

1. Disposition en lamelles croisées de manière à contrebalancer le gonflement (ou retrait) élevé dans la direction transversale par le faible gonflement (ou retrait) dans la direction des fibres.
2. Imperméabilisation en surface ou imprégnation par des résines plastiques pour retarder la diffusion de l'eau.

3. Réduction de l'hygroscopicité de la matière ligno-cellulosique par traitements thermiques (la dégradation des hémicelluloses supprime en partie les agents responsables des variations dimensionnelles)
4. Gonflement de la matière avec réduction de la quantité d'eau susceptible d'être adsorbée.
5. Pontage chimique entre les chaînes cellulosiques pour minimiser leurs déplacement lors de l'insertion des molécules d'eau.

C'est la troisième classe de traitement de stabilisation qui nous intéresse, mais qu'entend-on par traitement thermique ? Les traitements thermiques du bois sont nombreux et de plusieurs types suivant le but recherché. On peut schématiquement distinguer:

*** Le séchage**

Après la coupe de l'arbre, on soumet le bois à une élévation de température afin de le sécher. En effet, le bois, ainsi que nous l'avons vu, est très hygroscopique. Afin de limiter les variations d'humidité, il est nécessaire de sécher le bois jusqu'à une teneur en eau en général inférieure à 20 %. Une faible teneur en eau a l'avantage de diminuer l'hygroscopie du bois, d'améliorer sa stabilité dimensionnelle, ses propriétés mécaniques et de permettre sa conservation dans le temps (au-delà de 20% d'humidité, les micro-organismes attaquent le bois). Les séchages conventionnels dépassent rarement 80°C, mais actuellement, de nombreuses études sont en cours sur les effets du séchage haute-température, à la limite de la température considérée comme le début de la décomposition du bois (180°C).

*** Les traitements thermiques "durs": liquéfaction, gazéification, pyrolyse, combustion,...**

Le bois dans ce contexte n'est plus considéré comme un matériau, mais comme une matière première, soit pour libérer de l'énergie (chauffage) ou donner un nouveau combustible plus performant (charbon de bois, gaz), soit comme produit de base pour la chimie (pyroligneux, composés phénoliques). Toutes ces réactions se font à de très hautes températures (jusqu'à 1000°C). Elles ne sont donc pas étudiées dans leurs étapes intermédiaires, généralement complexes et sans intérêt dans la perspective envisagée.

*** Les traitements intermédiaires.**

Entre 180°C et 350°C, il y a une plage de mystère: ce n'est plus du séchage, le bois subissant d'importantes réactions chimiques, mais ce n'est pas encore de la carbonisation. Très peu de travaux et d'études ont été menés dans ce domaine de températures. Nous pouvons citer le procédé de torréfaction du bois déjà mentionné, les travaux de Stamm et les travaux des équipes allemandes.

II.1.2. La pyrolyse du bois

II.1.2.1. Description

Par définition, la pyrolyse est la décomposition physique et chimique de matières organiques sous l'action de la chaleur et en absence d'oxygène. Le bois est un mélange hétérogène de polymères organiques possédant des liaisons plus ou moins fragiles. Un traitement thermique suffisamment énergétique pourra rompre certaines de ces liaisons et donner lieu à des réarrangements et des départs de produits volatils.

De façon plus précise, Browne (1958) a divisé le déroulement de la pyrolyse du bois en quatre domaines de températures (tableau II.1):

ZONE	A	B	C	D
T	< 200°C	200°C < T < 280 °C	280°C < T < 500 °C	> 500°C
<i>Produits de décomposition</i>	essentiellement vapeur d'eau gaz non combustibles traces de CO ₂ acide formique acide acétique	mêmes gaz que dans la zone A, beaucoup moins de vapeur d'eau, jus pyroligneux produits non inflammables	gaz combustibles CO, CH ₄ pyroligneux goudrons résidu charbonneux (catalyse les réactions secondaires)	charbon gaz
<i>Réactions</i>	déshydratation complète de l'eau libre et de l'eau adsorbée	difficile de dire si les réactions sont exothermiques ou endothermiques	pyrolyse active réactions franchement exothermiques	gazéification, complétion de la réaction de carbonisation

Tableau II.1. Définition des zones de températures de la pyrolyse du bois

On peut notamment remarquer que la pyrolyse " active " ne commence seulement que vers 250°C - 260 ° C. Dans les premières étapes, ce sont avant tout les réactions de déshydratation du bois qui prédominent. L'étude du procédé de torréfaction (Bourgeois et al., 1986) montre que l'exothermicité des réactions commence vers 200° C pour les feuillus et 220° C pour les résineux, mais elle est encore très faible. Au-delà de 250 -260 ° C, l'exothermicité devient importante, la

réaction est de plus en plus difficile à contrôler: elle peut s'emballer et partir en carbonisation si la chaleur produite n'est pas rapidement évacuée .

II.1.2.2. Les facteurs d'influence

En général, une élévation de température seule ne gouverne pas le processus de décomposition du bois et il existe de nombreux autres facteurs susceptibles d'influencer le déroulement des réactions de dégradation thermique. Fengel et Wegener (1982) citent entre autres le temps de traitement, la nature de l'atmosphère, la pression, le taux d'humidité, etc ...

D'une manière générale, il est possible de distinguer :

- d'une part, les paramètres dépendant de l'état initial du bois , soient:

*** l'essence**

elle joue un rôle à la fois par sa composition chimique qui conditionne évidemment la perte de masse consécutive à la dégradation (Stamm (1956) note que, pour une même température, la dégradation thermique des feuillus est supérieure à celle des résineux) et par l'organisation cellulaire qui conditionne le mouvement des liquides et des gaz;

*** le taux d'humidité initial**

il va influencer la perte de masse totale, ainsi que les cinétiques et les transferts de chaleur et de masse, et par conséquent, les vitesses de décomposition ;

*** la géométrie et la longueur caractéristique de l'échantillon**

si la taille de la pièce de bois est supérieure à 1 mm, Maa et Bailie (1973) ont montré qu'on ne pouvait plus négliger les phénomènes de transfert de chaleur ; il y a alors installation d'un gradient thermique et avancée du front de pyrolyse dans le temps et l'espace; de plus, Roberts (1971) fait remarquer que si l'échantillon est épais, l'évacuation des produits de décomposition est plus lente et ceux-ci peuvent alors subir des réactions secondaires (on a dans ce cas un phénomène d'autocatalyse);

- d'autre part, les paramètres du procédé proprement dit :

en effet, la pyrolyse peut se dérouler de manière isotherme (la température à laquelle est soumis l'échantillon est constante) ou dynamique (elle varie au cours du temps).

Dans les deux cas, les facteurs suivants jouent un rôle :

*** la température de traitement**

*** le temps de séjour**

car les cinétiques dépendent du temps et de la température;

*** la nature de l'atmosphère**

un nombre important d'observations expérimentales ont montré que la présence d'un oxydant tel que l'oxygène de l'air ne modifie pas, mais accélère seulement les réactions internes du matériau. Les premières étapes de la combustion sont similaires à celles de la pyrolyse, car les flux de gaz émis empêchent l'oxydant de diffuser au sein du matériau. Seuls les gaz entourant la particule s'enflamment et modifient la température de surface. Quant à l'air présent dans les pores de l'échantillon, Stamm (1956) fait remarquer que, quand la température s'élève, il se dilate et s'échappe avant d'initier l'oxydation.

Les essais de Belleville (1982) ont montré que pour une atmosphère inerte ou légèrement réductrice, on ne voyait pas d'influence de sa nature. Mitchell et al. (1953) ont noté que la perte de masse maximale était obtenue en système fermé avec recyclage des gaz de décomposition. Stamm (1956) a également observé une dégradation supérieure en atmosphère humide à celle obtenue en atmosphère sèche. Dans le cas de traitement sous vapeur, on peut noter que des réactions d'hydrolyse se superposent aux réactions de pyrolyse proprement dites.

*** la pression**

Il existe peu de données dans la littérature sur son influence. Si elle augmente, la perte de masse augmente et la complétion de la réaction est plus rapide, ce qui pourrait être expliqué par une autocatalyse par les gaz avec promotion des réactions secondaires .

*** la présence éventuelle de catalyseurs**

Ils peuvent être présents dans le bois ou ajoutés. Tang (1967) a étudié l'effet de catalyse des sels organiques. Chow (1971) fait remarquer que les extractibles ont un effet de catalyse sur la pyrolyse du sapin. Avat (1989) a également émis l'hypothèse que les extractibles étaient les initiateurs d'une décomposition radicalaire des hémicelluloses.

Dans le cas d'un environnement en température dynamique, un autre facteur important est bien sûr **la vitesse de montée en température**, dont l'augmentation déplace les mécanismes de décomposition vers les hautes températures, ainsi que **la vitesse de balayage des gaz** si ceux-ci sont en mouvement ; dans ce cas, les produits de décomposition sont éliminés et ne peuvent plus réagir à la surface de l'échantillon.

II.1.3. Analyse thermique du bois

Le bois n'est pas un matériau inerte et il est extrêmement sensible aux conditions de son environnement. Le bois vert se dégrade spontanément même à température ambiante. En règle générale, les feuillus apparaissent plus réactifs que les résineux. Sous certaines conditions, Kollmann et Scheider (1964) ont observé des changements des propriétés physiques à partir de 100° C : réduction de la sorption, de la masse et des dimensions anhydres .

Hillis (1975) fait remarquer que les changements dans le bois ont lieu selon une relation **temps-température-humidité**. Les composés chimiques sont arrangés d'une façon physiquement hétérogène et leurs propriétés physiques diffèrent, en particulier leur température de transition vitreuse. La présence d'eau abaisse la valeur de cette température et modifie les cinétiques de dégradation , car les mouvements moléculaires sont facilités. Elle accélère également la vitesse de transfert de chaleur vers l'intérieur d'une pièce massive de bois.

Par l'étude des thermogrammes du bois et de ses différents constituants, on peut décrire plus finement la pyrolyse. Ceux-ci peuvent être obtenus par ATD (Analyse Thermique Différentielle) (ou TDA : Thermal Differential Analysis) , où on mesure l'écart de température entre une référence et l'échantillon , ou bien par DSC (Differential Scanning Calorimetry) où c'est le flux de chaleur entre référence et échantillon qui est mesuré.

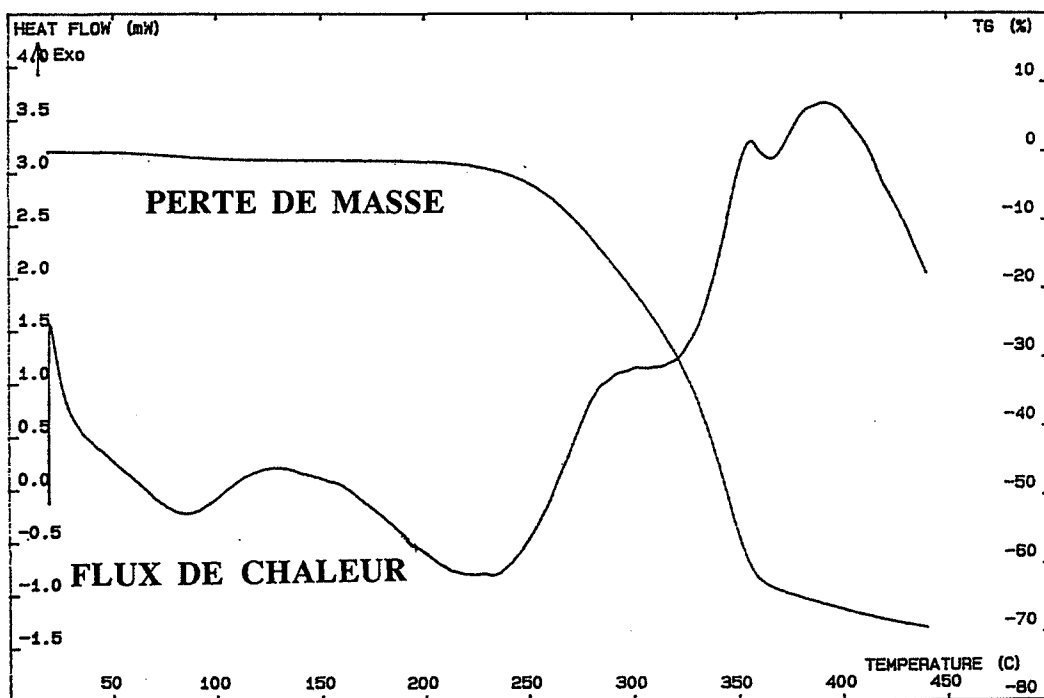


Figure II.1. Thermogramme de bois (peuplier- dynamique- 5°C/mn)

Fengel et Wegener (1982) distinguent sur un thermogramme de bois (cf fig.II.1):

- entre 20° C et 150° C: un endotherme prononcé avec un pic endothermique apparaissant entre 120 et 150 ° C Le bois est un matériau pouvant contenir jusqu'à 200 % d'humidité. Si on lui

fournit de l'énergie, elle sera utilisée en premier lieu pour évaporer l'eau (processus endothermique). Cette zone de température correspond au séchage du bois. La vapeur d'eau produite migre différemment selon qu'elle provient de l'eau libre ou de l'eau liée, et les phénomènes d'évaporation dans le solide sont compliqués par une convection anisotrope de la vapeur, qui peut se recondenser dans les zones plus froides du matériau.

- de 180°C à 250 ° C: la thermicité des réactions est difficile à déterminer; le thermogramme présente une forte dérive thermique, avec une légère tendance à l'exothermicité. Les dégradations des hémicelluloses et de la lignine débutent.

- à partir de 250° C: la transformation devient fortement exothermique et le bois évolue vers le charbon de bois, avec dégagement de CO₂ et de pyroligneux. Les différents pics exothermiques sont grossièrement attribuables aux dégradations successives des composants du bois.

II.1.3.1. Dégradation thermique des différents constituants

Beall (1970,1971) a étudié par analyse thermique la décomposition du bois et de ses constituants (cf fig.II.2 et tab.II.2).

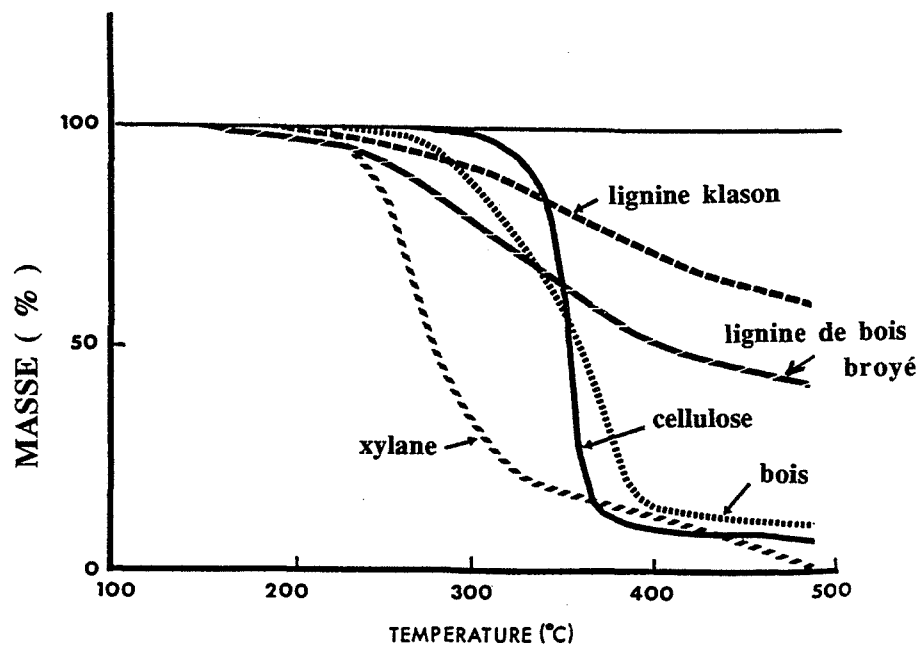


Figure II.2. Pertes de masse en fonction de la température des différents constituants du bois (d'après Shafizadeh, 1977)

*** La cellulose**

Les réactions exothermiques commencent à 230° C et deviennent endothermiques vers 315° C-330° C. Les régions amorphes sont les premières à se dégrader. Le domaine de décomposition est assez pointu. Les comportements en air et en atmosphère inerte sont inversés.

*** les hémicelluloses**

Ce sont les composants les plus fragiles thermiquement et ils sont les premiers à se dégrader.

*** La lignine**

L'analyse de différents types de lignine extraites met en évidence un premier pic exothermique entre 400° C et 440° C et un deuxième à 675° C. On a pu observer un exotherme démarrant à 200° C qui atteint un plateau entre 290°C et 380°C et une deuxième réaction exothermique dont le pic se trouve aux environs de 420° C. Cependant, l'extraction modifie les propriétés de la lignine et il n'est pas possible de prédire avec précision son comportement in situ.

Les composants deviennent plus réactifs après le passage de leur transition vitreuse (cf §I.5.3.4), car les molécules sont moins rigides. La présence d'humidité accélérera par conséquent les réactions de décomposition puisqu'elle abaisse les transitions vitreuses.

Constituants du bois	domaine de décomposition (° C)	enthalpie déterminée en ACD (10 ° C / mn) (kJ/kg)
cellulose (Whatman)	325 - 390	230 (endo)
cellulose (feuillu)	300 - 400	76 (endo)
cellulose (résineux)	300 - 400	64 (endo)
xylane (feuillu)	205 - 260	- 38 (exo)
glucomannane (résineux)	180 - 350	43 (endo)
lignine (Klason)	275 - 760	- 430 (exo)
lignine (Bjorkman)	110 - 660	- 294 (exo)
lignine (cellulase)	160 - 470	- 183 (exo)
lignine + hémicelluloses (feuillu)	400 - 700	- 330 (exo)
lignine + hémicellulose (résineux)	400 - 700	- 510 (exo)

Tableau II.2. Décomposition thermique des différents constituants du bois (d'après Beall, 1971)

Les effets de dégradation thermiques des différents constituants ne semblent pas additifs (fig.II.3) et il est difficile d'extrapoler le comportement du bois à partir d'un mélange en proportions de ses différents constituants (Wozniak, 1982, Bartholin et al, 1986).

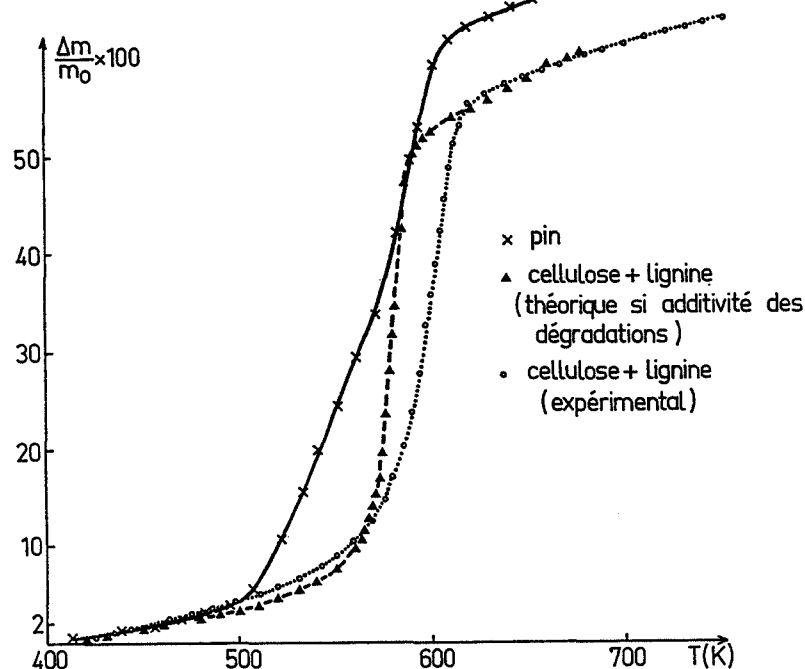


Figure II.3. Illustration de la non-additivité des décompositions thermiques (d'après Bartholin et al., 1986)

II.1.4. Premières étapes de la pyrolyse

Les premiers événements chimiques dans le bois sont peu connus: l'étude des produits de pyrolyse a permis d'en dénombrer jusqu'à 213 ! De Groot et al.(1988) ont analysé les produits de décomposition de la pyrolyse du bois à 250 °C sous atmosphère d'azote et résumé leurs conclusions par le schéma suivant :

HEMICELLULOSES	→	décarboxylation de l'acide uronique perte de l'arabinose décroissance du xylose perte des groupements acétyls
CELLULOSE	→	scission de chaînes création de radicaux libres transglycosylation légère diminution du glucose
LIGNINE	→	perte de méthanol autres changements non identifiés

Ainsi, dans la zone de températures qui nous intéresse, on peut noter que c'est surtout la décomposition des hémicelluloses qui prédomine. Les produits volatils détectés par DeGroot et al. (1988) par infrarouge pour un traitement à 250° C de 23 mn sont:

- * méthanol (3,5 % de la perte de masse totale)
- * acide formique (5 %)
- * acide acétique (7,5 %)
- * dioxyde de carbone (10,5 %)
- * eau (21,5%)

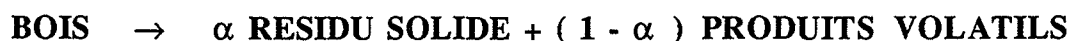
La libération d'acide acétique par les hémicelluloses va favoriser l'hydrolyse des zones amorphes de la cellulose. La lignine subit également des modifications: de 175° C à 240° C, on observe une augmentation du taux mesuré de lignine (Bourgois et al.,1989), attribuée à une condensation des produits de décomposition des hémicelluloses. Entre 260° C et 280° C, cette condensation s'accompagne d'autres modifications rendant la lignine plus hydrophobe (Fengel et Wegener, 1982). Funaoka et al.(1990) ont mis en évidence des phénomènes de condensation de la lignine au cours d'un traitement thermique: une des conséquences est qu' elle devient plus rigide et moins réactive.

II.1.5. Cinétiques chimiques

De façon générale, les mécanismes de décomposition thermique des matériaux polymériques à longues chaînes sont très compliqués. La pyrolyse du bois recouvre une centaine de réactions concurrentes ou consécutives et de légères variations dans les conditions de chauffe ou dans la composition du matériau peuvent non seulement affecter la vitesse de réaction, mais également son déroulement.

Il n'est donc possible que de proposer un schéma réactif global qui simplifie l'approche du problème et permet d'exploiter les données expérimentales, mais s'avère très vite limité pour la compréhension des phénomènes et fournit des paramètres cinétiques très dispersés fortement dépendant des conditions opératoires.

Le schéma retenu par la plupart des auteurs est celui d'une réaction globale irréversible d'ordre un:



et la perte de masse s'exprime de la façon suivante :

$$-\frac{dM}{dt} = K (M(t) - M_f)$$

avec : $K = k_0 \exp\left(\frac{-E}{RT}\right)$

ou d'une façon plus générale, la cinétique peut être exprimée en fonction du degré d'avancement de la réaction α par:

$$\frac{d\alpha}{dt} = k_0 \exp\left(\frac{-E}{RT}\right) (1 - \alpha)^n$$

Bien que l'utilisation d'un tel formalisme soit contestée dans le cas d'une cinétique hétérogène en milieu solide (où la notion même d'ordre de réaction perd son sens), il est celui qu'ont retenu et exploité presque tous les auteurs traitant du sujet, tout en insistant sur le fait que ce soit une simplification grossière. Les expériences de Murty-Kanury (1972) qui a mesuré la perte de masse à différents rayons (fig.II.4) dans un cylindre par densitométrie à rayons X montrent que la réaction a bien lieu dans tout le volume. Cependant, la vitesse de réaction augmente de la surface vers le centre : alors qu'une valeur de vitesse de réaction de $0,1 \text{ s}^{-1}$ est obtenue à 337°C à la surface, elle l'est seulement à 150°C sur l'axe du cylindre. Cet effet accrédite l'hypothèse d'existence de phénomènes d'autocatalyse dans les échantillons massifs. Les produits gazeux primaires de décomposition peuvent subir des craquages secondaires catalysés par le solide pyrolysé. La cinétique dépend alors du temps de résidence des produits de pyrolyse, de la surface de contact disponible entre gaz de décomposition primaires et matrice solide poreuse, et du nombre de sites actifs sur le solide.

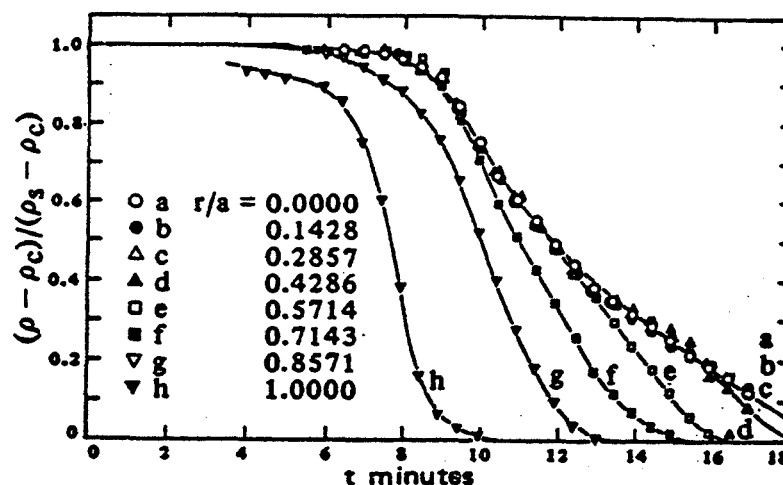


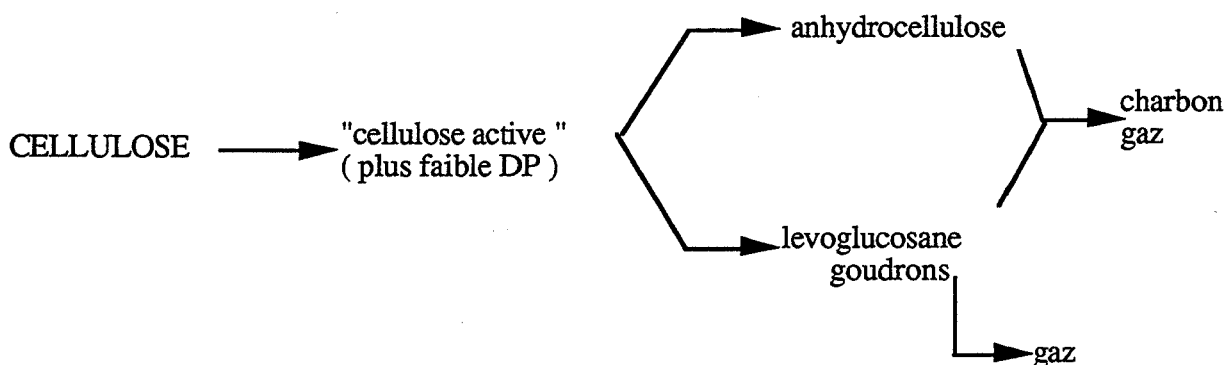
Figure II.4. Perte de masse à différents rayons dans un cylindre (d'après Murty-Kanury)

Les modèles d'une simple réaction globale sont d'une utilité limitée, parce que la quantité finale de résidu solide ne peut être connue à-priori puisque l'expression cinétique en est fonction. De

plus, comme généralement le montrent les expériences, la quantité finale de résidu solide elle-même dépend des conditions du procédé et par conséquent, le modèle à une simple réaction irréversible est inadéquat.

D'autres modèles cinétiques ont été avancés qui font intervenir deux ou plusieurs réactions parallèles ou successives, en général irréversibles et d'ordre 1. Tinney (1965) propose une réaction en deux étapes, le passage de l'une à l'autre dépendant du taux de conversion, le taux de conversion critique étant 33%. De même, Madorsky et al. (1958) proposent un mécanisme en deux étapes pour la pyrolyse du bois ou de la cellulose. Une réaction de basse énergie d'activation et une réaction de haute énergie d'activation se déroulant simultanément, le contrôle de la première à la deuxième se fait au fur et à mesure de l'élévation de température. Dans son étude de la pyrolyse de la cellulose, Hirata (1974) a interprété ses données comme un mécanisme en deux étapes avec une température de transition de 315 ° C.

Le mécanisme suivant de deux réactions en compétition est souvent proposé comme interprétation de la pyrolyse de la cellulose :



Deux chemins réactifs sont en compétition : l'un implique une déshydratation et des réactions de carbonisation et il prédomine à basses températures; le second met en jeu une dépolymérisation et une volatilisation des polymères constitutifs et produit à hautes températures des composés volatiles combustibles (Zaror et Pyle, 1986).

Dans son étude des données cinétiques de la littérature, Roberts (1970) fait remarquer qu'on peut distinguer deux groupes d'énergies d'activation: le premier donnant un E moyen de 230 kJ/mol qu'il attribue à la dépolymérisation de la cellulose, l'énergie de rupture des liens carbone-carbone dans les polymères tournant autour de 280 kJ/mol, et un deuxième groupe autour de 125 kcal/mol dont la vitesse de réaction est affectée par l'ajout de sels organiques et des conditions favorisant l'autocatalyse.

On peut également remarquer que les données obtenues sur des sciures ou de petits échantillons sont moins dispersées que celles obtenues sur des échantillons de grande taille où la

combinaison des effets de structure, du transfert de chaleur et la promotion de réactions secondaires font varier considérablement les paramètres cinétiques.

L'analyse de Roberts le conduit à distinguer plusieurs domaines de températures dominés par des cinétiques différentes:

$$\underline{T < 310 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

réaction modérément autocatalysée

$$\underline{310 \text{ } ^\circ \text{C} < T < 360-400 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

pyrolyse complète de la cellulose

$$\underline{T > 400 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

pyrolyse complète de la lignine.

Sur des cylindres, la variation continue de la taille des différentes régions de pyrolyse fournit des cinétiques de perte de masse qui évolue continument des régions de basses températures vers les régions de hautes températures, et par conséquent l' énergie d'activation apparente est plus faible. Une chauffe lente du bois à des températures inférieures à 300°C privilégiera les phénomènes d'autocatalyse. Les cinétiques de pyrolyse mesurées seront alors extrêmement sensibles aux conditions du procédé et ne pourront être extrapolées à d'autres cas.

D'autres auteurs ont cherché à séparer dans la pyrolyse du bois les contributions des différents constituants. Bilbao et al.(1989) ont étudié séparément la pyrolyse de la cellulose, du xylane (pris comme représentant des hémicelluloses du bois) et de la lignine. Leurs résultats donnent une cinétique globale du premier ordre pour chaque constituant. La cinétique globale de la pyrolyse du bois est alors déduite de ces résultats sur les domaines de températures suivants:

$$\underline{T < 230 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

La décomposition des hémicelluloses prédomine. On approche la vitesse de réaction de la décomposition du bois par celle des hémicelluloses.

$$\underline{230 \text{ } ^\circ \text{C} < T < 260 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

Les hémicelluloses et la cellulose se décomposent simultanément. Pour des faibles valeurs de conversion, c'est la décomposition des hémicelluloses qui prédomine. Aux hautes conversions, celle de la cellulose prend le contrôle.

$$\underline{260 \text{ } ^\circ \text{C} < T < 290 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

On observe surtout la décomposition de la cellulose. Sa vitesse de réaction est prise pour calculer la cinétique.

$$\underline{T > 290 \text{ } ^\circ \text{C}}$$

Lignine et cellulose se décomposent simultanément. Pour les hautes valeurs de conversion, la décomposition de la lignine domine.

Il est important de remarquer que ces zones sont assez arbitraires puisqu'une augmentation de la vitesse de montée en température déplace les mécanismes de décomposition vers les hautes températures.

De même, les études par Alves et Figueiredo (1988) des courbes $-\frac{dM'}{dt}$ fonction de M' , où M' est la masse adimensionnée et t le temps, obtenues par thermogravimétrie isotherme fournissent pour la pyrolyse de la cellulose à basses températures un schéma réactionnel constitué de trois réactions consécutives : la première produirait environ 30% des produits gazeux, la seconde est attribuée à un réarrangement ou activation du solide sans dégagement gazeux tandis que la troisième produirait la majorité des volatiles. Par leur étude, ils ont également exclu les mécanismes de croissance et nucléation (équation d'Avrami-Erofeev) et de diffusion. Alves et Figueiredo (1989) ont également interprété leurs expériences de thermogravimétrie isotherme multi-étapes de la pyrolyse du bois comme la superposition de huit réactions indépendantes de différentes fractions massiques, chacune possédant sa cinétique propre.

Quant à Fairbridge et Ross (1978), ils déduisent de leurs expériences de TG isotherme sous azote une expression cinétique du type $[-\ln(1 - \alpha)]^2 = kt$ pour des valeurs de $\alpha < 0.85$. Ils font également remarquer que dans le cas de réactions parallèles concurrentes d'une décomposition de polymère par rupture aléatoire de chaînes, il est difficile d'obtenir des paramètres cinétiques à partir d'étude en TG dynamique. Pour les dégradations de polymères, seul dans le cas où le mécanisme de décomposition est invariant avec le degré d'avancement, on peut retrouver un bon accord entre TG dynamique et TG isotherme. Quand les deux méthodes donnent des résultats différents, les données des analyses isothermes sont plus faciles à interpréter et plus sûres. Or les données de Parker et LeVan (1989) montrent que l'énergie apparente d'activation, le facteur préexponentiel et la chaleur de combustion des gaz sont tous des fonctions du taux de conversion.

Pour prendre en compte toute la complexité du phénomène, certains ont considéré des chemins de réaction, des ordres et des énergies d'activation variables, fonctions du taux de conversion. Ainsi, les étapes initiales de la pyrolyse ne suivraient pas une loi du premier ordre, mais une réaction d'ordre 0. L'étude par Kosik (cité par Fengel, 1982) de la dégradation thermique du hêtre a donné pour la plupart des composés des réactions d'ordre zéro pour les basses températures et d'ordre un au-delà. D'autre part, la présence d'humidité semble accélérer les réactions de décomposition. Skaar (1976) a mesuré pour un bois humide des vitesses de réaction dix fois plus importantes que pour le bois sec.

Les données cinétiques de la littérature sont très dispersées (cf tab.II.3). Afin d'expliquer cette dispersion, certains auteurs ont avancé le concept d'"effet de compensation cinétique" (Brown, 1982, Chornet et Roy, 1980). Les valeurs des couples (E, k_0) sont reliées par une relation linéaire $\ln k_0 = aE + b$. Les paramètres cinétiques apparents dépendent des variables du procédé avec lequel elles ont été obtenues, mais non les valeurs de a et de b .

Un autre sujet de polémique est la valeur de l'enthalpie (ou chaleur) de la réaction de pyrolyse (cf tab.II.4), les auteurs n'étant même pas d'accord sur son signe (endothermique ou exothermique). Cependant, une réaction considérée endothermique à une température de référence

peut s'avérer exothermique par rapport à une autre température de référence. Le manque de définition précise de la façon dont a été mesurée la chaleur de pyrolyse ne permet pas d'expliquer les résultats expérimentaux contradictoires relevés dans la littérature.

Il semblerait que la pyrolyse primaire ait une enthalpie de réaction endothermique, mais faible (puisque'il s'agit d'un processus de volatilisation et qu'il faut apporter de la chaleur à un solide pour produire des gaz) et que le principal dégagement de chaleur soit à attribuer à des réactions secondaires exothermiques. Un procédé où la montée de température est rapide et les gaz de réaction éliminés par un flux de gaz inerte apparaîtra globalement endothermique, tandis qu'une montée lente en température et un confinement des produits de réaction dans le volume conduiront à une réaction globale exothermique.

Auteur	Matériau	domaine de T (° C)	chaleur de réaction (kJ/kg)
Tang&Neill (1964)	bois	200-390	322 (endo)
		390-500	-129 (exo)
	cellulose	240-450	368 (endo)
	lignine	190-345	79 (endo)
		345-500	-167 (exo)
Roberts (1970)	cylindre de hêtre secs	< 300 r < 1cm	-230 (exo)
		r > 1 cm	- 313 (exo)
		> 300	- 1170 (exo)
Kung (1973)	densité 0,58	hautes températures	202 (endo)
Blackshear&Murty-Kanury (1970)	en air plusieurs essences	hautes températures	1254 (endo)
Havens (1972)	pin hêtre	500-1100	196 (endo)
			109 (exo)
Kansa (1977)	densité 0,58	hautes températures	418 (endo)

Tableau II.4. Valeurs de la chaleur de pyrolyse

Auteur	matériau	technique	températures (°C)	ordre	E (kJ/mol)	k ₀ (s ⁻¹)
Stamm (1956)	résineux (massif)	ATG (four-air)	94-250	1	123	3,5 10 ¹²
	résineux (massif)	ATG (bain-métal)	167-300	1	125	3,3 10 ¹⁴
	α-cellulose (douglas)	ATG (four-air)	110-220	1	109	7,3 10 ¹²
	hémicelluloses (douglas)			1	112	8,4 10 ¹³
	lignine (douglas)			1	96	1,3 10 ¹¹
Roberts (1971)	cylindres de hêtre séchés en étuve	ATG (N ₂)	285	1	105	4,3 10 ⁷
			353-445	1	63	1,5 10 ³
Tang (1964)	sciure étuvée	ATG (vide)	280-325	0	96	3,2 10 ⁵
			325-350	1	226	6,5 10 ¹⁶
	cellulose		240-308	0	146	6,4 10 ⁹
			308-360	1	234	3,9 10 ¹⁷
	lignine		280-344	0	88	164
			344-435	1	38	0,93
Hirata (1974)	cellulose initiation	TG/ATD	20-500	1	165	2,2 10 ⁷
	propagation	vide (5°C/mn)		1	112	
	lignine		280-300	1	146	7,2 10 ¹⁰
	hémicelluloses		220-280	1	119	4,8 10 ⁸
Bilbao (1989)	Pin -cellulose	TG isoth. & TG dyn	260-290	1	113	3 10 ⁹
	hémicelluloses	(1,5 °C/mn)	< 230	1	35	0,42
	lignine		>290	1	112	6,3 10 ⁵
Alves (1989)	Pin fraction 1 (20%)	TG isoth. multi-étapes	250-600	1	83	7 10 ⁵
	fraction 2 (53%)			1	146	2 10 ⁹
	fraction 3 (2%)			1	77	4,3 10 ⁴
	fraction 4 (3%)			1	60	28,3
	fraction 5 (2%)			1	139	5 10 ⁶
	fraction 6 (3%)			1	130	3,2 10 ⁵
Vovelle (1986)	peuplier sciure	TG dyn (23°C/mn)	20-247	0,25	76	4,3 10 ⁴
			247-347	1,1	255	3,9 10 ¹⁹
	douglas	(13°C/mn)		0,7	109	3,4 10 ⁷
				0,9	257	1,4 10 ¹⁹

Tableau II.3. Estimation des paramètres cinétiques

II.1.7. Transferts de chaleur et de masse

Nous n'avons pas pour l'instant considéré la pyrolyse que sous l'angle des réactions chimiques. Or, dans un morceau de bois massif, il y a couplage entre les phénomènes physiques de transfert de chaleur et de masse, et les processus chimiques de dégradation thermique des composants. Bien que la thermolyse d'un morceau de bois soit loin d'être un processus connu avec exactitude, il est possible d'en décrire chronologiquement les principaux phénomènes qui l'accompagnent:

- * transport d'énergie à la surface du solide par convection et rayonnement
- * conduction de la chaleur dans le solide
- * mouvement de l'eau liquide par capillarité et diffusion
- * évaporation de l'eau
- * migration de la vapeur d'eau par diffusion et convection (éventuellement recondensation dans les zones plus froides)
- * réactions chimiques produisant des volatiles et un résidu solide
- * convection des volatiles de l'intérieur du solide vers la surface (flux sortant s'opposant au flux de chaleur entrant)
- * réactions secondaires possibles catalysées par le solide
- * convection des volatiles vers les zones internes plus froides (accélérant ainsi le transfert de chaleur vers le centre) et recondensation .

Bien évidemment, les variations d'enthalpies associées aux réactions chimiques et aux changements de phases dépendent des conditions physiques et thermiques **locales**. La vitesse apparente du procédé va donc dépendre :

- des propriétés du solide (conductibilité, chaleur spécifique, perméabilité) et des propriétés des volatiles;
- du profil interne instantané des températures;
- des conditions aux limites sur l'échantillon.

Ceci est compliqué par :

- la structure anisotrope du bois
- le changement des propriétés physiques du matériau en cours de pyrolyse .

La question qui se pose est de savoir dans quel cas on peut négliger la physique du transfert de chaleur et ne considérer qu'une réaction contrôlée par les cinétiques chimiques (de paramètres apparents E et k_0) et dans quel cas la réaction est contrôlée par le transfert de chaleur (auquel cas seule joue une conductivité thermique apparente). Entre ces deux cas, les deux facteurs à la fois jouent un rôle. Pour une température de four de 738 ° C, Maa et Bailie (1973) ont trouvé par

modélisation sur des cylindres que la réaction était sous contrôle chimique pour un rayon inférieur à 0.1 cm et sous contrôle thermique pour un rayon supérieur à 3 cm. Pour les dimensions intermédiaires, il faut prendre en compte à la fois le transport de chaleur et les cinétiques de réactions.

Zaror et Pyle (1984) ont étudié les cas limites permettant de séparer les deux phénomènes :

1/ conditions internes uniformes : contrôle par transfert externe

Quand la vitesse de transfert interne est très rapide, la température peut être considérée comme uniforme dans l'échantillon. A ce moment, la zone de réaction s'étend dans tout le volume de la particule et la vitesse de réaction est indépendante de la position.

L'équilibre des énergies s'écrit :

$$C_p \cdot \rho \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{b}{r} \{ h_c(T_f - T) + \sigma \varepsilon (T_f^4 - T^4) + (-\Delta H) \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right) \} \quad (1)$$

et la cinétique des réactions est la suivante :

$$\frac{\rho_r \rho_\infty}{\rho_0 - \rho_\infty} = \exp \left\{ - \int_0^t k_0 \exp \left(- \frac{E}{RT} \right) dt \right\} \quad (2)$$

où T est la solution de (1).

2/ contrôle cinétique

Quand la vitesse de transfert thermique à la surface et à l'intérieur de la particule sont très rapides, le solide est à la même température que l'environnement . La réaction est alors isotherme à $T = T_f$ et (2) devient :

$$\frac{\rho_r \rho_\infty}{\rho_0 - \rho_\infty} = \exp \left\{ - k_0 t \exp \left(- \frac{E}{R T_f} \right) \right\}$$

3/ contrôle par transfert de chaleur (concept du noyau variable (shrinking core))

Dans ce cas, un transfert de chaleur interne très lent est couplé avec une vitesse très rapide de pyrolyse. Si le gradient de température est très important, la zone de réaction se concentre sur un volume très étroit. Le procédé peut être alors considéré comme un front de pyrolyse progressant à la vitesse de propagation de l'onde de chaleur. Si la pyrolyse est complète à $T = T_p$, sa vitesse est alors la vitesse à laquelle T_p se propage dans la particule.

La progression du front de réaction est alors donnée par :

$$\frac{\rho_0 - \rho_t}{\rho_0 - \rho_\infty} = 1 - \frac{r_c^b}{R^b}$$

avec b facteur géométrique = 1 parallépipède
 = 2 cylindre
 = 3 sphère

Zaror et Pyle ont considéré le rapport entre la constante de temps associée au passage du front de température dans la particule par conduction :

$$\tau_T = \frac{\rho \cdot C_p \cdot R^2}{\lambda}$$

et la constante de temps associée à la réaction chimique

$$\tau_R = \frac{1}{k_0}$$

Ce rapport est un estimateur de l'importance relative des deux phénomènes et on le définit comme un nombre de pyrolyse :

$$Py = \frac{\lambda}{k_0 \rho C_p R^2}$$

L'importance relative entre le transfert de chaleur externe et le transfert de chaleur interne est estimé par le nombre de Biot :

$$Bi = \frac{h R}{\lambda}$$

A partir de ces deux nombres, on peut définir un nombre de pyrolyse externe :

$$Py' = Bi \cdot Py = \frac{h}{\lambda \rho C_p R}$$

FACTEUR DE CONTROLE	Bi	Py	Py'
prise en compte de tous les facteurs		toutes les valeurs	
transfert de chaleur externe	petit		petit
cinétique	petit		grand
transfert de chaleur interne	grand	petit	

Tableau II.3. Récapitulatif de l'influence des facteurs

De ces considérations, on peut conclure que la pyrolyse de petites particules (sciure) sera entièrement sous contrôle cinétique tandis que la pyrolyse d'échantillons larges (> 5 cm) sera entièrement sous contrôle du transfert de chaleur.

Cette approche néglige complètement les problèmes de transfert convectif liés au flux des gaz de pyrolyse. Murty-Kanury et Blackshear (1970) ont calculé le rapport entre le terme de convection $C_g(\rho_g V_g) \frac{\partial T}{\partial x}$ et le terme de conduction $\frac{\partial}{\partial x}(\lambda \frac{\partial T}{\partial x})$, analogue au nombre de Peclet :

$$Pe = \frac{C_g \rho_g V_g L}{\lambda}$$

Ils ont choisi arbitrairement comme critère pour négliger le terme convectif que celui-ci soit inférieur à 0.1. Or leurs estimations de ce nombre sont toujours supérieures à 0.1. Kung (1972,1973) quant à lui affirme qu'à chaque instant du procédé de pyrolyse, l'amplitude relative du terme de convection est équivalente au terme de conduction transitoire et que, par conséquent, il ne peut en aucun cas être négligé. Par contre, Roberts (1970) avait noté la tendance des volatiles à se déplacer le long de plans isothermes parallèles au fil du bois et dans les fissures où il existe un mauvais contact entre solide et gaz. Le transfert convectif entre les gaz de pyrolyse et le bois dans ces conditions a de fortes chances d'être négligeable.

La volatilisation du bois est à l'origine d'un retrait dans les trois axes qui génère des contraintes conduisant à la création de fissures. Ces fissures modifient la vitesse de dégagement des gaz puisqu'elles découvrent des zones de bois vierges sous la couche de solide pyrolysé et modifient la perméabilité du matériau. Dans le cas de la pyrolyse, au contraire du retrait bien connu dû aux variations d'humidité, il y a un retrait longitudinal important conséquence des pertes d'oxygène en bout de chaîne et créations de liaisons entre les carbones des extrémités (Beall, 1987).

Roberts (1970) avait observé sur des bois de densité similaire, mais de perméabilités longitudinales très différentes, dans des conditions de chauffe identiques, de grandes différences entre les vitesses de perte de masse. Sous certaines conditions, il existe donc des gradients de pressions élevés dans le solide contrairement à l'hypothèse couramment admise d'un gradient de pression nul. Mais avec la création de fissures dans le matériau, il est probable que la résistance au flux gazeux, et par conséquent les gradients de pression, chutent très rapidement. Il n'en reste pas moins qu'en toute logique, il faudrait également tenir compte du champ de pression induit dans le solide.

II.1.8. Modélisation

L'étude de la modélisation de la pyrolyse du bois s'est surtout effectuée dans le contexte de l'étude de la carbonisation, de la combustion ou de la gazéification, dans un domaine de températures en général bien largement supérieures à celles qui nous intéressent.

D'autre part, le manque de données expérimentales généralisables à tous les cas pour la pyrolyse du bois ne permet pas de fournir un modèle de pyrolyse généralisé, mais plutôt des modèles s'adaptant à des conditions expérimentales bien définies tant au niveau des conditions de traitement thermique que de la géométrie et la préparation des échantillons. Il est à regretter que nombre d'auteurs ne précisent pas ces conditions et rendent difficiles l'exploitation de leur travail.

En ce qui concerne la mise en équations, le travail rigoureux de Wichman (1989) a permis d'établir une dérivation des équations de conservation pour la pyrolyse. Il s'appuie sur l'hypothèse des milieux continus, où la substance multiphase poreuse du bois est considérée homogène et continue. Seules les phases gazeuses et solides sont prises en compte. Bien que remarquable, son travail reste essentiellement théorique et déconnecté de la réalité expérimentale.

Nous avons choisi d'établir une revue des différents modèles proposés dans la littérature selon le degré approximatif de " complexité ".

II.1.8.1. Couplage conduction-réaction

Bamford et al.(1946) ont été les premiers à établir un modèle basé sur la combinaison des équations de conduction de la chaleur (à coefficients constants) avec celles de génération de chaleur par réaction chimique, supposée suivre une cinétique homogène du premier ordre.

De nombreux autres chercheurs (Roberts,1970, Tinney,1965, Belleville, 1982, Zaror et Pyle, 1984) ont utilisé à leur tour ce modèle qui peut être compliqué par l'introduction d'une cinétique à plusieurs étapes. Havens et al.(1972) quant à eux, introduisent dans ce modèle la prise en compte des variations des propriétés thermiques au cours de la pyrolyse.

Le bilan d'énergie en coordonnées cylindriques (en ne considérant qu'une seule dimension d'espace: le rayon) peut s'écrire globalement sous la forme

$$\frac{\partial (C_p \rho T)}{\partial t} = \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right) + (-\Delta H) \left(-\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)$$

où la cinétique de perte de masse est donnée par

$$-\frac{\partial \rho}{\partial t} = k_0 \exp\left(\frac{-E}{RT}\right) (\rho - \rho_f)$$

II.1.8.2. Prise en compte des phénomènes de convection interne

Murty-Kanury et Blackshear (1970) définissent dans le solide en cours de pyrolyse plusieurs zones spatio-temporelles:

Première zone

Le transfert de chaleur est uniquement gouverné par une conduction transitoire.

Deuxième zone

La couche de surface réagit. La conduction s'accompagne d'une réaction de pyrolyse. Les gaz produits introduisent un terme de convection s'opposant au terme de conduction. Les condensables se dirigent vers les zones froides par diffusion, puis se condensent et se réévaporent. La région non encore pyrolysée est alors modifiée par un phénomène de préchauffage (cooking-effect).

Troisième zone

Trois couches sont superposées : résidu carboné, solide en cours de pyrolyse et solide encore vierge.

Quatrième zone

Le front de pyrolyse atteint le plan de symétrie. Il n'y a plus que deux zones spatiales: le résidu carboné et le solide en cours de pyrolyse.

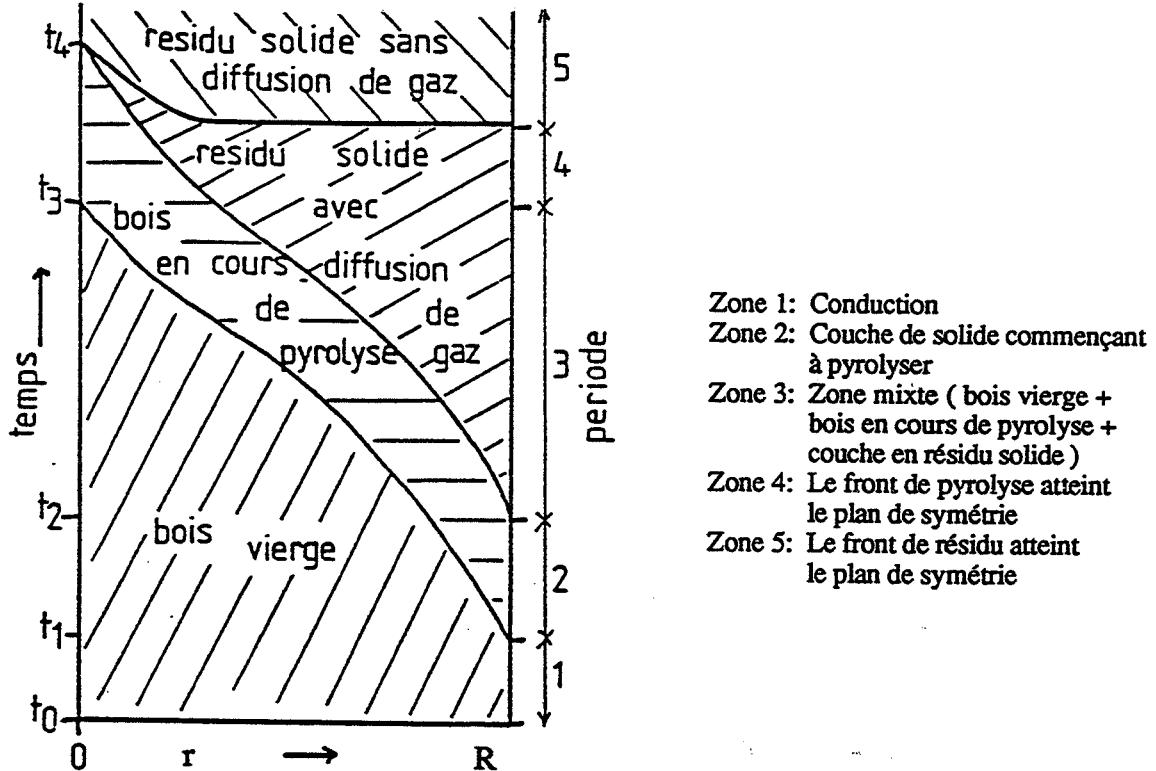


Figure II.4 . Les zones spatio-temporelles de la pyrolyse

A partir de ces considérations, Murty-Kanury (1972a, 1972b) développe un modèle prenant en compte les variations des propriétés entre le bois et le charbon (extrapolation linéaire), le terme de transport dû à la convection interne en plus des termes de conduction et de pyrolyse et en considérant trois phases temporelles :

- 1/ phase de préchauffage
- 2/ phase de pyrolyse d'un corps " infini "
- 3/ phase de pyrolyse d'un corps " fini ".

De même, Kung (1972,1977) a développé pour différentes géométries (plaques, cylindres) un modèle incluant le terme de convection

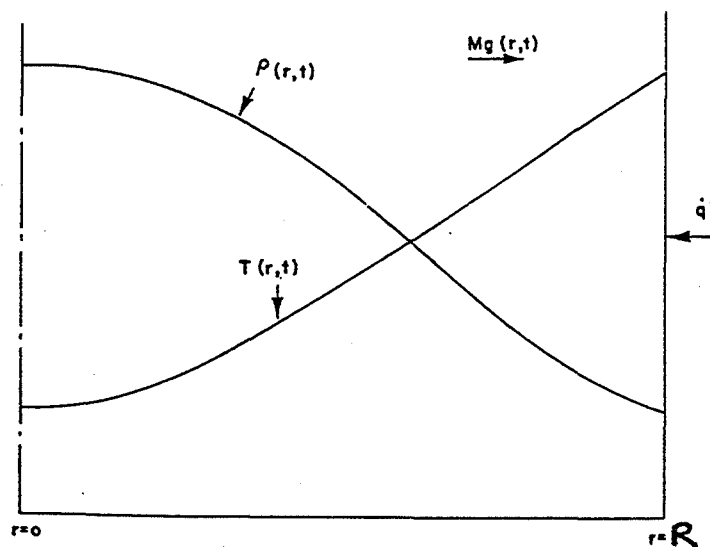


Figure II.5. Schéma des différents profils

Le modèle prend en compte :

- 1/ la conduction transitoire
- 2/ la convection de chaleur interne des volatiles
- 3/ la décomposition du matériau actif en volatiles et résidu carboné
- 4/ l'endothermicité du processus de décomposition
- 5/ les variations de densité, de la chaleur spécifique et de la conductivité thermique.

Il émet les hypothèses que les volatiles sont en contact étroit avec le solide, donc en équilibre thermique et à la même température, qu'il n'y a pas d'accumulation d'énergie des gaz dans le solide et pas de champs de pression. Il néglige les réactions secondaires et les phénomènes de transport de l'humidité sous phase vapeur et liquide.

Finalement, son bilan d'énergie s'écrit (pour une plaque en ne considérant qu'une dimension d'espace x):

$$\rho C_{ps} \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) + M_g \frac{\partial h_g}{\partial x} + \frac{\partial \rho}{\partial t} \left[\Delta H - \frac{\rho_b}{\rho_b - \rho_f} h_a + \frac{\rho_f}{\rho_b - \rho_f} h_c + h_g \right]$$

avec

$$h_c = \int_{T_{\infty}}^T C_{pc} dT$$

enthalpie spécifique du résidu carboné

$$h_a = \int_{T_{\infty}}^T C_{pa} dT$$

enthalpie spécifique du bois " actif "

$$h_g = \int_{T_{\infty}}^T C_{pg} dT$$

enthalpie spécifique des gaz de pyrolyse.

D'autre part, la conservation de la masse implique que le flux gazeux M_g peut être calculé à partir de:

$$\frac{\partial M_g}{\partial x} = \frac{\partial \rho}{\partial t}$$

La valeur d'enthalpie de pyrolyse ΔH qui accorde le mieux le modèle de Kung sur les données expérimentales est endothermique. Or on observe souvent au cours des expériences une température au centre supérieure à la température de surface, ce qui fait penser à l'existence d'un processus exothermique. Cependant, Kung montre que cette exothermicité locale apparente n'est pas contradictoire avec une endothermicité globale de la pyrolyse puisque l'énergie apparente de vaporisation à T , $L(T)$ peut s'écrire :

$$L(T) = (-\Delta H + h_g - \frac{\rho_b}{\rho_b - \rho_f} C_b T + \frac{\rho_f}{\rho_b - \rho_f} C_f T)$$

Cette fonction décroît avec la température puisque $C_f < C_b$ et peut même devenir négative pour de hautes températures, faisant ainsi apparaître le phénomène global comme exothermique (on peut alors observer un cas d'explosion thermique - thermal runaway -)

II.1.8.3. Prise en compte de la convection forcée des gaz. Inclusion d'une équation aux moments

Les modèles exposés jusqu'à présent ne prenaient pas en compte les gradients de pression qu'ils supposaient nuls. Le modèle de Kansa et al.(1977) considère :

- 1/ un flux thermique radial incident sur la surface et dépendant arbitrairement du temps
- 2/ un mécanisme de pyrolyse global d' Arrhénius à une seule étape
- 3/ une dépendance fonctionnelle linéaire des paramètres du système (densité, chaleur spécifique, conductivité thermique, porosité, perméabilité et masse moléculaire)
- 4/ un mouvement des fluides suivant la loi de Darcy
- 5/ des variations dimensionnelles négligeables
- 6/ un équilibre thermique local entre le solide et les volatiles.

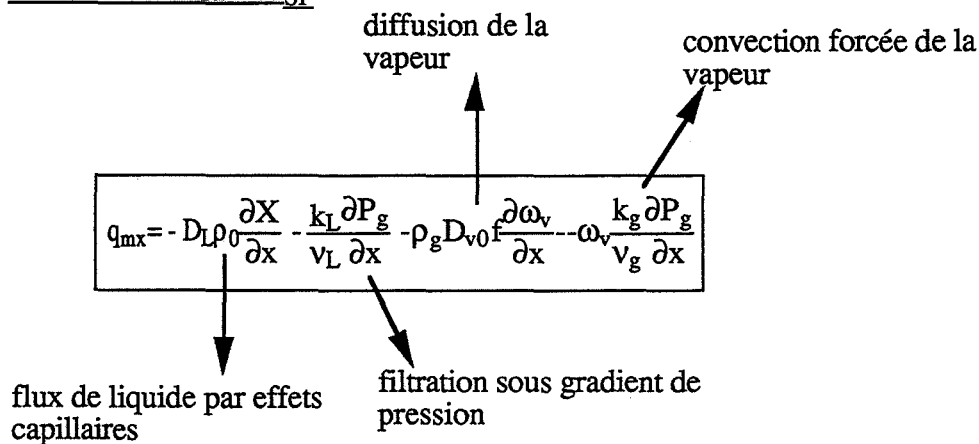
Ce modèle permet de prendre en compte les différences importantes de perméabilité entre la direction longitudinale et la direction transversale.

II.1.8.4. Pyrolyse d'un bois humide. Prise en compte des transferts de masse de l'eau.

Si l'échantillon de bois soumis à une élévation de température est humide, le processus de pyrolyse sera retardé, car il faut fournir de l'énergie supplémentaire pour vaporiser l'eau.

Avant de développer le modèle d'Alves et Figueiredo (1989) considérant la pyrolyse d'une particule de bois humide, nous avons tenu à rappeler de façon synthétique les lois de transfert de masse lors du séchage telles que les a présentées Basilico (1985). Nous rappelons qu'elles sont différentes dans le cas de l'eau libre et dans le cas de l'eau liée. Si l'on fait l'hypothèse d'un problème unidimensionnel (dans la réalité, les expressions suivantes sont tensorielles), le flux massique q_{mx} dans la direction x peut s'écrire (nous n'avons pas tenu compte des effets de thermomigration):

EAU LIBRE : $X > X_{SF}$



EAU LIÉE : $X < X_{SF}$

$$q_{mx} = -D\rho_0 \frac{\partial X}{\partial x} - \omega_v \frac{k_g}{v_g} \frac{\partial P_g}{\partial x}$$

diffusion eau liée

convection forcée sous l'action d'un gradient de pression total

D'autre part, l'évaporation de l'eau liée s'accompagne de phénomènes de retrait, donc de variations volumiques qui génèrent des contraintes mécaniques et des déformations de la pièce de bois.

Bien sûr, le modèle que nous allons présenter ne retient pas toute la complexité du processus de séchage, mais il a l'avantage de combiner les effets de la pyrolyse à ceux d'un modèle simplifié de séchage, où l'eau est supposée se vaporiser à sa température d'ébullition dans une zone spatiale bien délimitée C'. Toute la chaleur disponible dans cette zone sert uniquement à vaporiser l'eau liquide. La vapeur produite migre par convection en s'opposant au flux de chaleur entrant.

La formulation du problème est unidimensionnelle, dépendant de la géométrie de l'échantillon par le facteur géométrique b. Le volume du solide est supposé constant au cours du séchage et de la pyrolyse. Les gradients de pression sont négligés et la pression supposée constante égale à la pression externe. Les mouvements par diffusion de l'eau liée sont également négligés. Quelques considérations préliminaires montrent que ces hypothèses ne sont à-priori valables que dans le domaine de l'eau liée et pour des dimensions longitudinales peu supérieures aux dimensions transversales.

Le point d'ébullition de l'eau liée T_b est fonction du taux d'humidité et exprimé par une relation empirique, déterminée par Kent et al. (1981). Au-dessus de 15% d'humidité, $T_b(X)$ est constante et égale à la pression de vapeur saturante de l'eau liquide à la pression atmosphérique, soit 100° C. De même, l'enthalpie de vaporisation $H_v(X)$ est corrélée expérimentalement avec un polynôme du troisième degré jusqu'à $X = 30\%$. Au-delà, elle est constante et vaut 2260 kJ/kg.

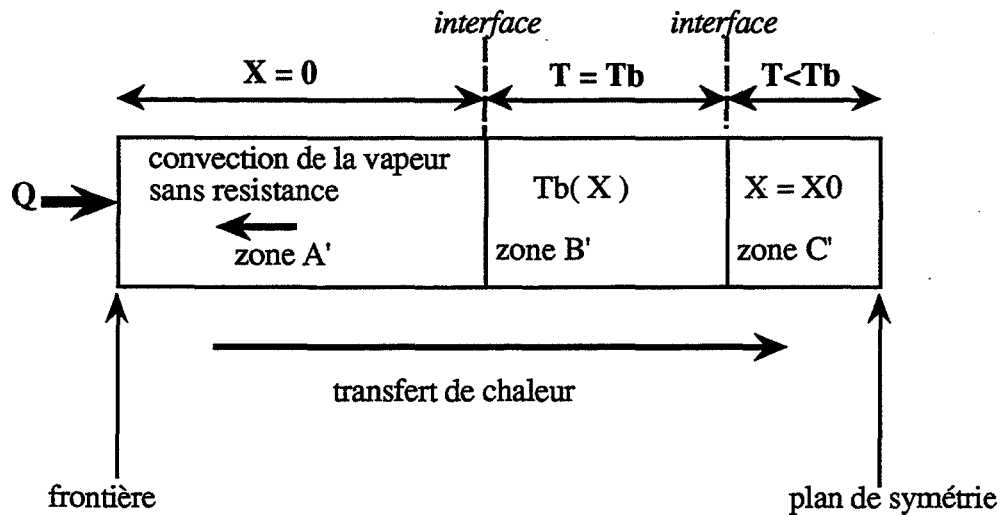


Figure II.6. Définition des zones spatiales du modèle d'Alves-Figueiredo

La figure II.6 illustre la décomposition en différentes zones de l'échantillon: dans la zone A', le bois est sec. La température dépasse T_b et peut être suffisamment élevée pour que débutent la réaction de pyrolyse et la production de gaz. La température du solide est uniquement déterminée par le bilan d'énergie qui comprend un terme de conduction, les termes de convection des gaz de pyrolyse et de la vapeur d'eau et la génération de chaleur par la réaction. Dans la zone B', il y a équilibre eau-vapeur et c'est l'équation $T_b = T_b(X)$ qui détermine la température. Le bilan d'énergie permet de déterminer la quantité d'eau vaporisée. Dans la zone C', le taux d'humidité est constant et c'est à nouveau le bilan d'énergie, comprenant uniquement un terme de conduction, qui détermine la température.

Les résultats de la modélisation comparés aux résultats expérimentaux présentent un très bon accord, d'autant plus qu'il n'y a pas eu d'optimisation des paramètres et que ceux-ci ont été uniquement déterminés expérimentalement.

II.2.ETUDE EXPERIMENTALE DU PROCEDE DE RETIFIGATION

II.2.1. Matériel

II.2.1.1. Les fours de traitements

Plusieurs prototypes de fours ont été développés pour l'étude du procédé de réтификаion. Conçus au départ pour l'étude et la mise au point du procédé de torréfaction, ils ont tous en commun de travailler en atmosphère inerte, condition sine qua non du procédé .

II.2.1.1.1. Les fours à gaz

Réacteur de laboratoire

D'un petit volume, et parfaitement agité, il sert à étudier le traitement sur des masses de 100 à 200 g de sciure ou des petits copeaux (fig.II.7). De contenance trois litres, il est régulé thermiquement par PID. La charge de bois est introduite instantanément et permet donc de travailler en pyrolyse flash. L'ensemble du système est balayé par un gaz vecteur inerte, une partie des gaz de pyrolyse incondensables peut être également recyclée et participer à l'atmosphère. Les gaz condensables sont récupérés et peuvent être analysés par chromatographie.

Four tournant

Ce four permet de rétifier des copeaux ou des plaquettes (fig.II.8). Il dispose d'un système de chargement tel que le bois est introduit dans l'enceinte seulement quand la température de consigne est atteinte et stabilisée. La puissance est fournie par des résistances électriques groupées en dessous du tambour et la régulation est effectuée par PID. L'homogénéisation de la charge est assurée par rotation du tambour. Les gaz sortants peuvent être piégés et condensés à trois niveaux: à 55° C, 12,5 ° C et -4° C et peuvent être immédiatement analysés. L'instrumentation du four comprend cinq thermocouples qui délivrent la température entre les copeaux de bois, la température dans l'enceinte, la température des gaz sortants et celle entre les résistances électriques et le tambour.

Four Levêque

Ce four (fig.II.9) constitue l'étape suivante avant la phase d'industrialisation. Il a été conçu au départ pour la torréfaction de charges importantes de plaquettes ou de copeaux, puis utilisé intensivement pour la rétificaion de grandes quantités d'échantillons massifs. Constitué d'un réacteur vertical d'un volume de 200 litres, il permet le traitement de charges de 50 kg environ. C'est un réacteur "batch" fonctionnant en lit fixe. La charge de bois est chauffée au moyen des gaz produits par la réaction. Les gaz recyclés par une boucle de ventilation/chauffage sont injectés à la base du réacteur, à travers une grille servant de diffuseur et récupérés à la partie haute du réacteur.

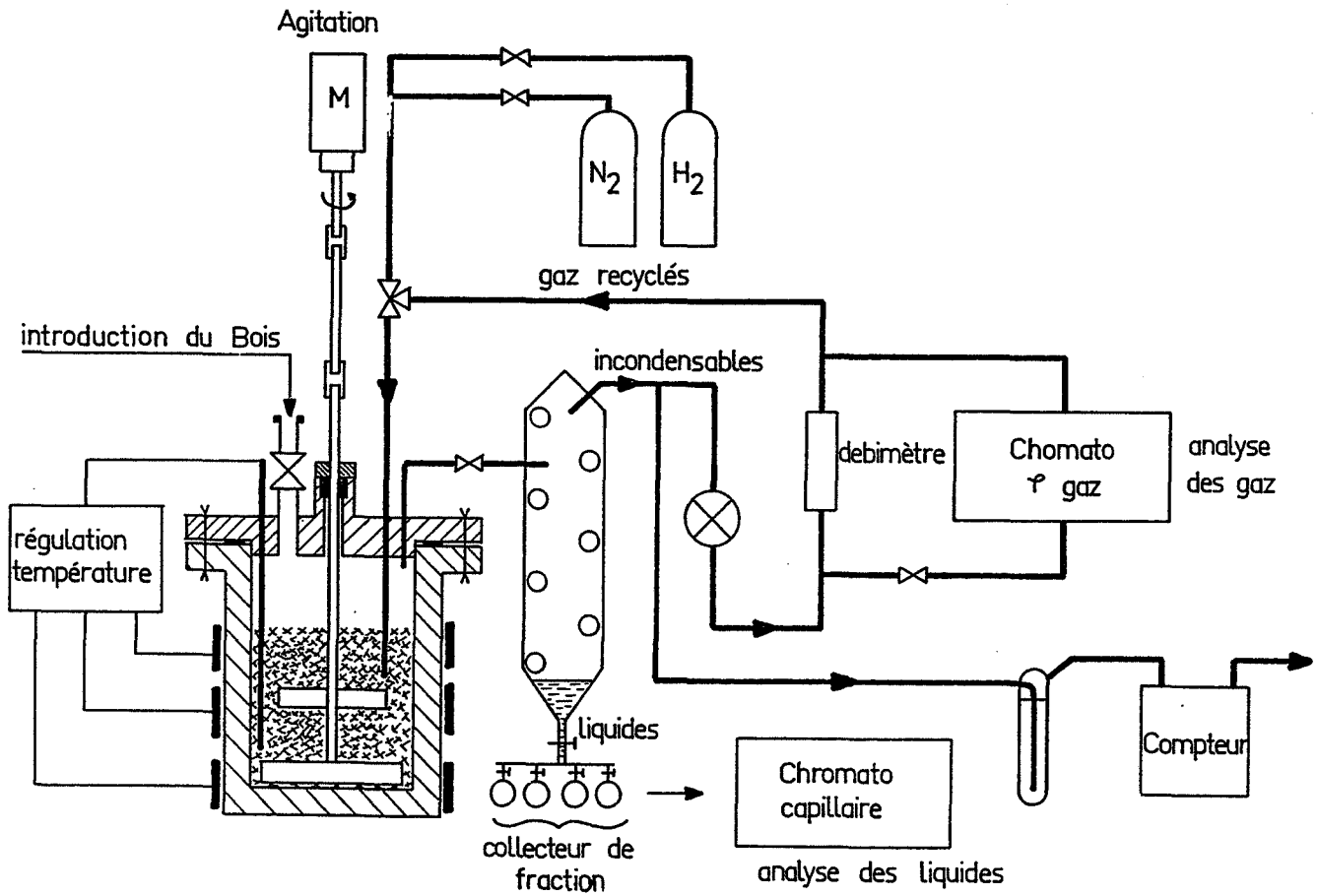


Figure II.7. Schéma du réacteur de laboratoire

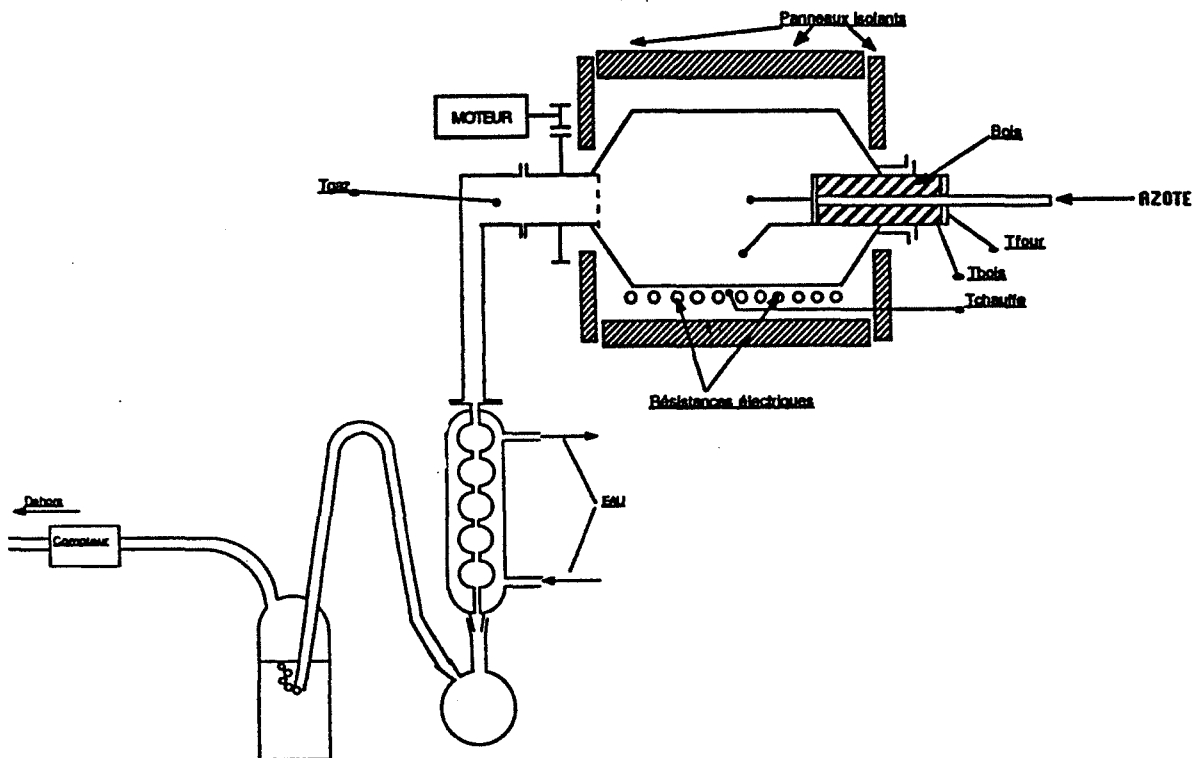


Figure II.8. Schéma du four tournant

L'atmosphère inerte est assurée par un balayage d'azote. Les échantillons à traiter sont déposés sur un lit de plaquettes de bois assurant la diffusion. La régulation se fait en tout ou rien par comparaison entre la température du bois acquise par thermocouple dans un échantillon témoin et la température de consigne et ajustement de la puissance électrique.

II.2.1.1.2. Les fours à bain

Nous désirions nous placer dans des conditions de traitement parfaitement isothermes pour étudier les phénomènes de transfert de chaleur et les profils de températures dans des pièces massives de bois. Or, dans les fours à gaz, ces conditions sont loin d'être remplies. Deux problèmes se posent: la régulation de la température et l'homogénéité de l'atmosphère du four. De plus, il faut tenir compte de la vitesse de balayage du courant gazeux et de la vitesse de montée en température de la rampe de régulation, ainsi que des perturbations liées à l'introduction de la charge de bois .

A cet effet, nous avons conçu et instrumenté des fours à bain. L'inertie thermique importante des fluides caloporteurs utilisés permet d'obtenir une température de bain homogène et constante au cours du temps. Le premier four, vertical, a été modifié en un four horizontal suite aux premières observations expérimentales qui ont montré la nécessité de prendre des précautions dans l'acquisition des températures par thermocouples et de minimiser au maximum la distance sur laquelle le thermocouple plonge dans le bain (ce point sera développé ultérieurement).

a/ Four vertical (fig.II.10)

Constitué de trois cylindres coaxiaux, il possède un volume intérieur de cinq litres où se trouve le fluide caloporteur (huile stable thermiquement ou paraffine). Les résistances chauffantes sont situées sur le cylindre médian. Une de ces résistances est contrôlée en tout ou rien. La température du bain est mesurée par thermocouple et comparée à la température de consigne, et le réglage de la puissance fournie au fluide se fait à partir de cette information en ajustant le courant électrique. Cette régulation en tout ou rien est suffisante grâce à l'inertie thermique élevée du bain. Il est homogénéisé par un agitateur magnétique situé en dessous du réservoir. Les deux cylindres internes sont isolés et placés dans un dernier cylindre constituant le corps externe du four.

b/ Four horizontal

Le corps du four est constitué d'une cuve rectangulaire isolée. Pour homogénéiser le bain, une pompe et un agitateur sont intégrés dans le système de chauffage. La contenance de la cuve est

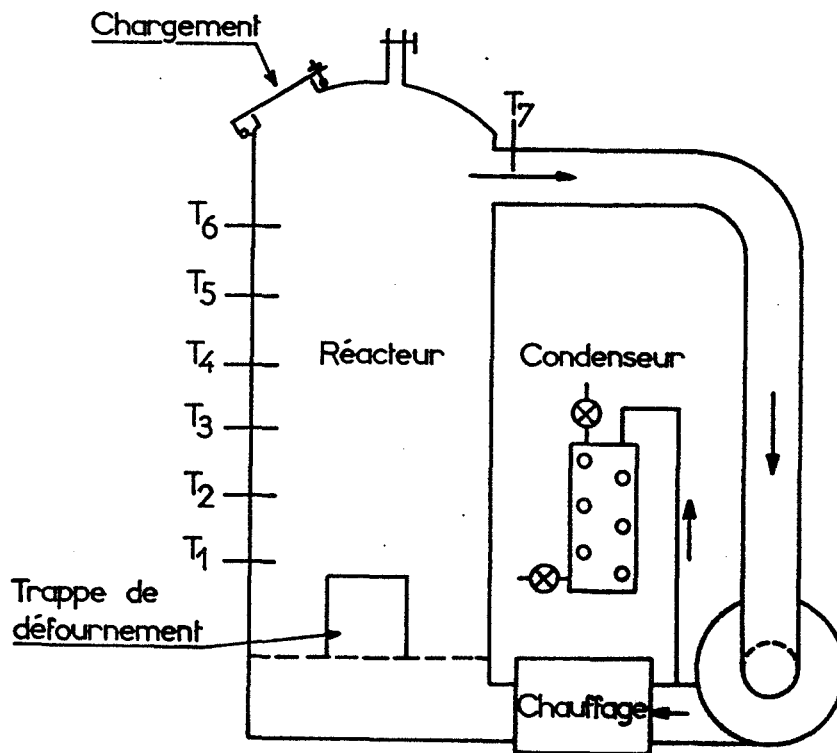


Figure II.9. Four Levêque

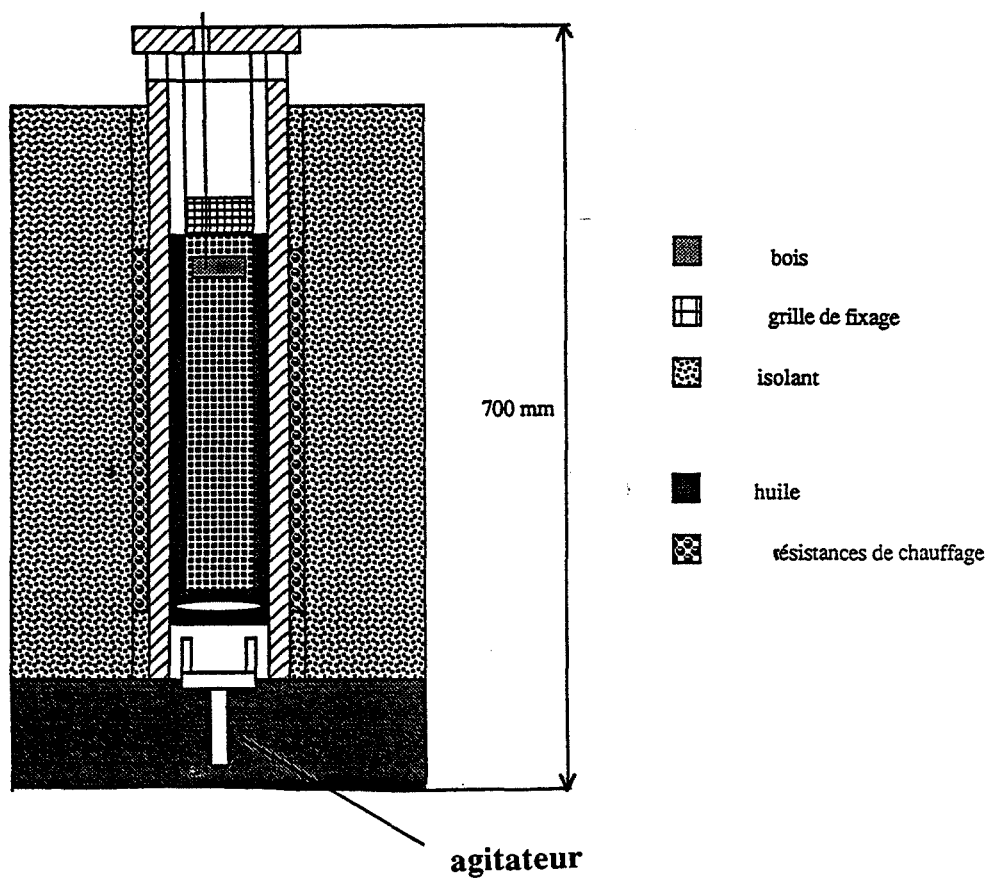
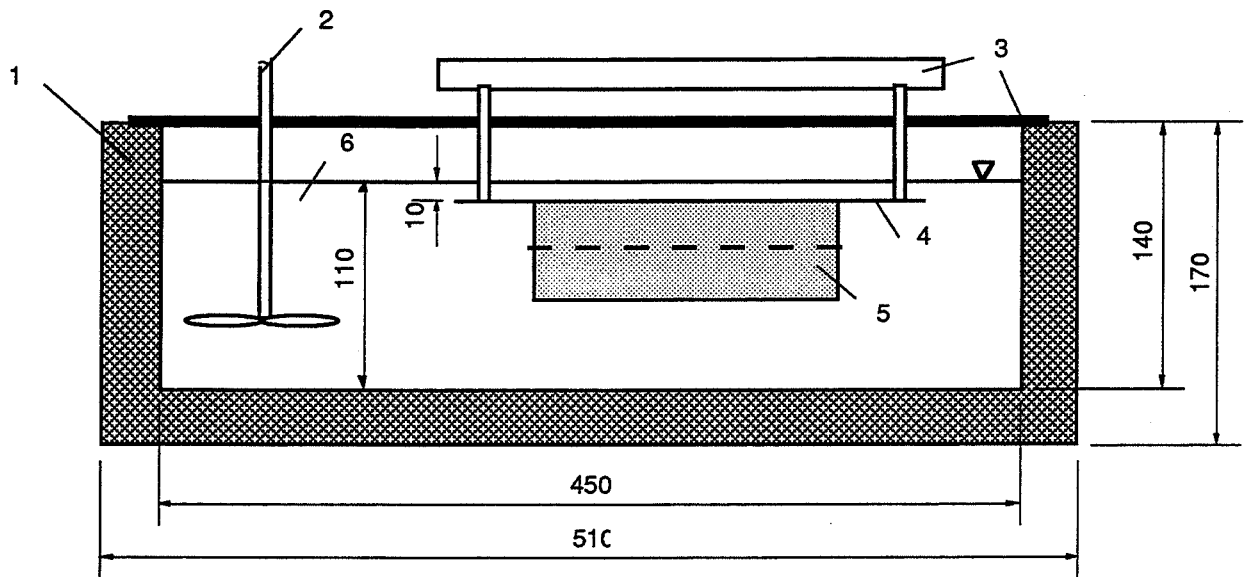


Figure II.10. Four à bain vertical

d'environ 6,5 litres. La régulation se fait de la même manière que dans le four vertical. Montée sous le couvercle se trouve une grille sous laquelle on bloque l'échantillon pour l'empêcher de flotter à la surface du bain. Le couvercle a été percé de trous pour faire passer les thermocouples mesurant la température à l'intérieur du bois.



- | | |
|----------------------------------|-----------------------|
| 1. boîte de chauffe et isolation | 4. grille de fixation |
| 2. agitateur | 5. échantillon |
| 3. couvercle avec poignée | 6. bain |

Figure II.11 . Schéma du four à bain horizontal

Si les fours à bain présentent l'avantage d'offrir des conditions de traitement parfaitement isothermes, ils ont malheureusement un inconvénient: le liquide diffuse dans l'échantillon lors du traitement. Cependant, il est probable que la pénétration du fluide dans l'échantillon a lieu seulement en fin de traitement lorsque le cylindre est retiré du four. Pendant le traitement, la génération de gaz, vapeur d'eau et gaz de pyrolyse, en créant une légère surpression dans le matériau, s'oppose à sa pénétration.

II.2.1.2 Mesure des profils de température

La température dans les échantillons a été mesurée avec sept thermocouples de type K (Ni-Cr) de diamètre 1 mm. Un thermocouple supplémentaire donne la température du bain. Le signal électrique délivré par les thermocouples est traité par une unité d'acquisition de données Hewlett-Packard HP3421 A. La conversion tension électrique - température et l'enregistrement séquentiel des données sont effectués par un HP série 200 modèle 9816. Pour les traitements ultérieurs des

données, il est possible de transférer les données sur un ordinateur sous système d'exploitation DOS.

II.2.1.2.1. Implantation des thermocouples

Des expériences préliminaires ont mis en évidence le problème de l'influence de la conductivité intrinsèque du thermocouple. Du fait de la grande différence entre la conductivité du thermocouple et celle du bois, les mesures peuvent être faussées et la température délivrée par le thermocouple est fortement influencée par sa conduction propre. Nous nous sommes aperçus de cet effet en mesurant les profils en température pour des points symétriques par rapport à l'axe du cylindre (fig.II.13).

Nous avons choisi de travailler sur des échantillons cylindriques et de mesurer la température pour différents rayons. Nous avons au préalable mesuré la température sur la génératrice et constaté que pour des échantillons de 180 mm de long et de diamètre 32 mm, la température était constante dans la direction longitudinale jusqu'à 30 mm des bords (fig.II.12). Du fait de l'anisotropie des conductivités thermiques et du rapport a_L/a_{trans} élevé, les champs de températures dans la direction longitudinale et dans le plan transversal sont découplés. Loin des bords du cylindre, la température pour un temps donné est uniforme le long de la direction longitudinale et varie uniquement dans la section transverse.

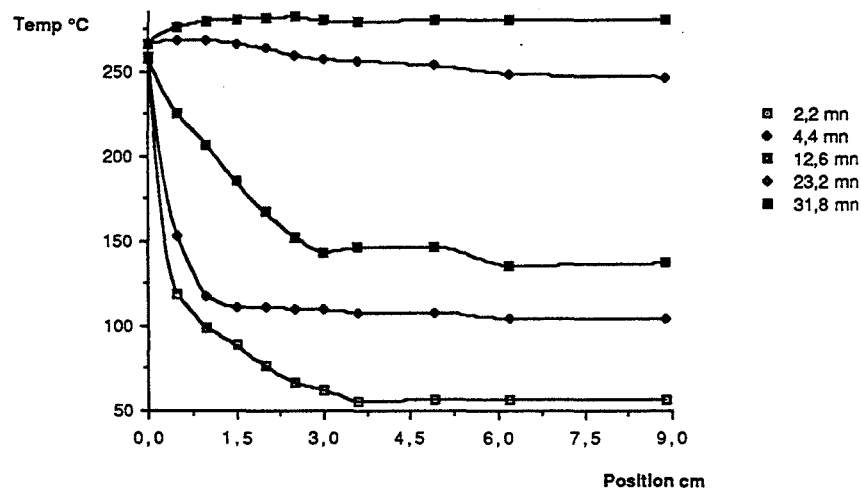


Figure.II.12. Homogénéité des profils de température dans la direction longitudinale

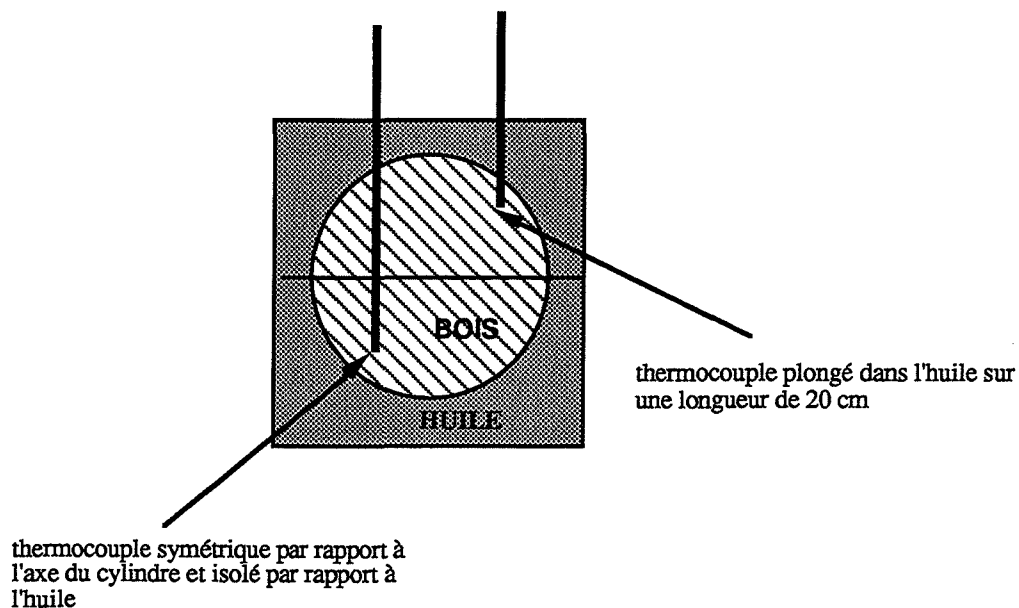


Figure II.13. Schéma de l'installation des thermocouples

Les courbes mesurées de l'évolution de la température en fonction du temps acquises pour six points symétriques deux à deux sur un cylindre de 42 mm montrent que les températures mesurées près de la surface dépassent largement les températures mesurées en traversant le bois (Fig.II.14).

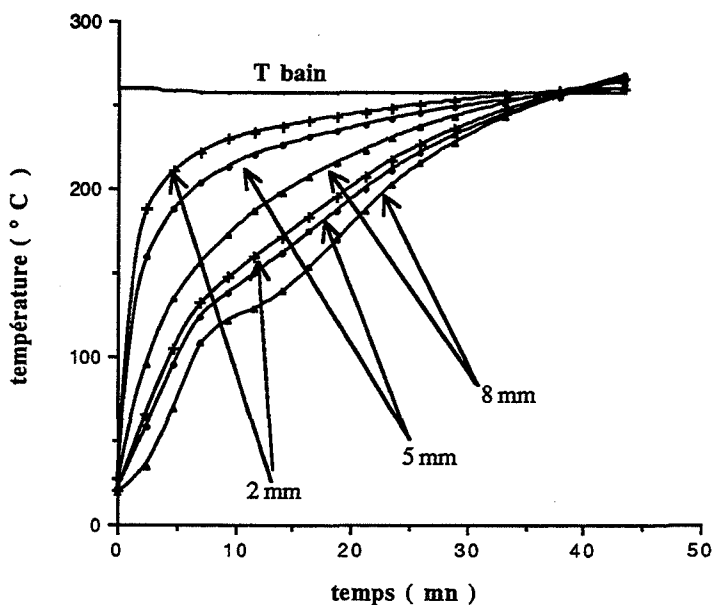


Figure II.14. Profils mesurés par des thermocouples symétriques par rapport à l'axe du cylindre

Deux phénomènes de conduction transitoires sont en compétition au point de mesure de la température: d'une part, ce que l'on veut mesurer et qui est relatif au bois et d'autre part, l'effet parasite dû à la conduction dans le thermocouple dont la partie plongée dans l'huile conduit la chaleur jusqu'au point de mesure (fig.II.15).

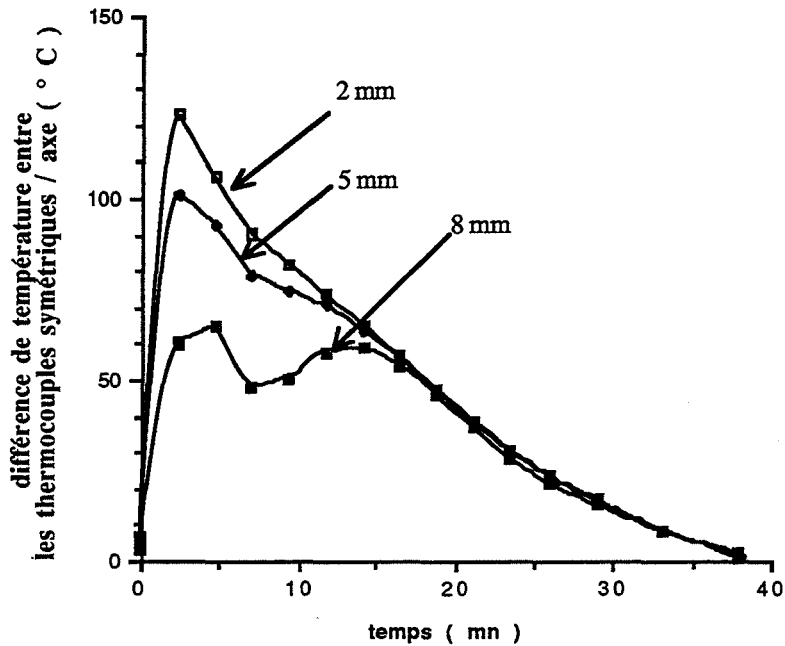


Figure II.15 . Evolution temporelle de l'écart de température entre deux thermocouples symétriques par rapport à l'axe du cylindre.

Les erreurs de mesures seront donc d'autant plus importantes que la distance dans le bois sera faible. En tenant compte des remarques précédentes, nous avons choisi de mesurer les températures dans la bûche de bois en faisant traverser l'échantillon au thermocouple et en minimisant au maximum la distance sur laquelle plonge le thermocouple dans l'huile (fig.II.16).

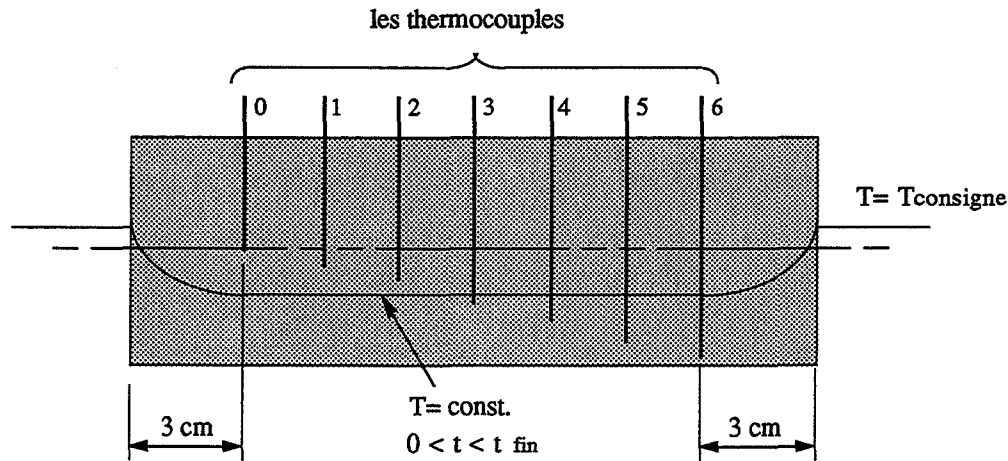


figure II.16. Implantation des thermocouples dans la bûche

Pour mesurer l'évolution de la température à différents rayons pour trois diamètres de cylindres (32 , 42 ,52), nous avons planté les sept thermocouples dans le bois suivant la répartition donnée dans le tableau II.6. Le huitième thermocouple dont nous disposons mesure la température du bain.

DIAMETRE (mm)	32	42	52
numéro du thermocouple	distance à la surface (mm)		
0	16	21	26
1	13	17	22
2	10	14	18
3	7	11	14
4	5	8	10
5	3	5	5
6	1	2	2
7	BAIN	BAIN	BAIN

Tableau II.6. Distances à la surface des thermocouples

II.2.1.2.2. Déroulement de la manipulation

Les expériences se déroulent de la manière suivante: l'opérateur met en marche la boîte de chauffe pour que le bain atteigne la température de consigne, puis il charge l'ordinateur et lance le programme d'acquisition des températures qui lui permet de suivre à l'écran l'évolution de la température du bain (disponible également avec un Statop). Entretemps, il prépare les

échantillons, perce les trous où il installe les thermocouples, pèse et mesure leurs dimensions et assure l'étanchéité avec une pâte silicone afin que le liquide ne pénètre pas dans les conduits. Après avoir fixé le bois sur la grille, il referme le couvercle et relance le programme d'acquisition. En fin de manipulation, il sort l'échantillon du four, et après refroidissement, en retire les thermocouples, le pèse et mesure ses nouvelles dimensions. Les données en température sont enregistrées sur disquettes et les courbes obtenues tracées sur table traçante.

II.2.2 Résultats expérimentaux

II.2.2.1 Résultats préliminaires

Les premières mesures des champs de températures ont été faites sur des échantillons de peuplier de 32 mm de diamètre et de 180 mm de longueur pour trois températures de consigne : 220 ° C, 240 ° C et 260 ° C. et une durée totale de traitement fixe de 45 mn. L'humidité des cylindres testés a été estimée sur dix échantillons témoins par dessiccation jusqu'à obtention d'une masse constante en étuve à 103 ° C. Les résultats donnent une humidité moyenne de 12 % \pm 1 % .

A cette époque, nous n'avons pas pris de précautions pour l'implantation des thermocouples et seules les températures acquises au centre peuvent être considérées comme exploitables. Cependant, les données sur les pertes de masses et les variations dimensionnelles peuvent être utilisées afin de dégager une cinétique globale

II.2.2.1.1. Cinétique globale

Les résultats de cette première série d'expériences sont résumés dans le tableau II.7:

Tc ° C	Tm	ρ_i kg/m ³	ρ_f	Δm %	ΔL %	ΔR %	ΔT %	ΔV %	$\Delta \rho$ %
220	222	522	504	9,5	0,05	2,2	4,9	7,2	3,4
	225	531	514	9,8	0,1	2,3	4,7	7,1	3,2
	220	545	532	10,0	0,2	3,1	5,4	8,5	2,4
240	239	525	487	14,5	0,3	2,1	5,4	7,8	7,2
	243	491	432	16,6	0,2	2,0	2,9	5,1	12
	241	519	483	16,8	0,1	3,7	7,1	10,8	6,9
260	254	510	464	18,4	0,05	2,6	8,1	10,8	9,0
	261	526	467	22,1	0,2	3,5	8,8	12,5	11,2
	265	604	512	28,3	0,9	6,7	8,5	16,1	15,2

Tableau II.7 Résultats de la première série - peuplier - diamètre 32 mm - H = 12 %

Quelques remarques peuvent être faites à propos de ce tableau: les variations dimensionnelles consécutives au traitement sont fortement anisotropes, les variations dans la direction longitudinale sont négligeables, tandis que dans le plan transversal, on observe une différence entre le retrait dans le sens radial et le sens tangentiel, le retrait dans le sens tangentiel étant à peu près le double du retrait dans le sens radial. On observe par conséquent une déformation de la section transverse qui, initialement circulaire, devient elliptique (fig.II.15).

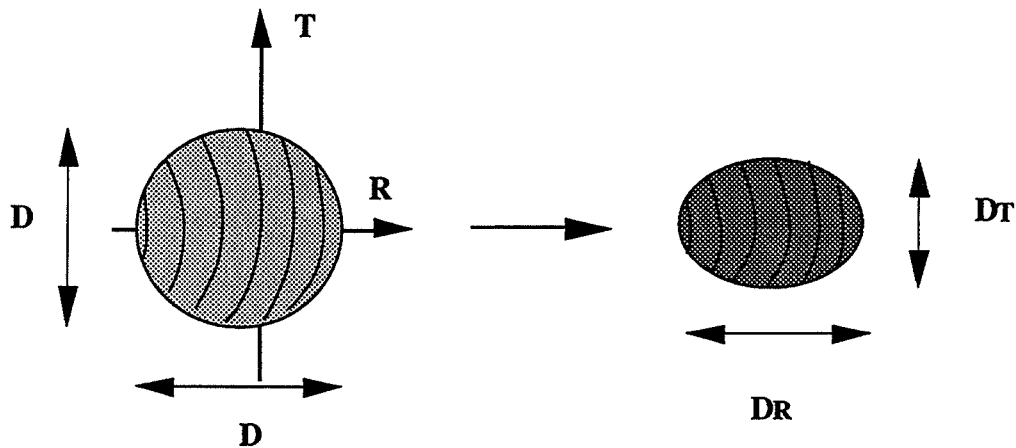


figure II.15. Modification de la section de la bûche

Nous avons négligé cet effet dans le calcul de la densité en assimilant la section finale à un cercle de diamètre $\frac{DT+DR}{2}$.

A partir des données du tableau 2, nous avons cherché à estimer les paramètres cinétiques du traitement en supposant une réaction unique irréversible à cinétique homogène d'ordre 1. Cette hypothèse est bien sûre grossière puisque d'une part, il y a existence de gradients de températures au sein de la bûche, et que d'autre part, le système complexe formé par le bois solide et les phases liquides et gazeuses suit de toute évidence une cinétique hétérogène et offre un large spectre de réactions possibles. Ce n'est donc qu'une cinétique globale que nous avons cherché à évaluer sans prétendre expliquer de mécanismes, afin d'utiliser les ordres de grandeur des constantes cinétiques dans la mise au point de notre modèle qui sera développé dans le paragraphe II.3.

En faisant l'hypothèse d'une réaction d'ordre 1, la cinétique s'écrit alors

$$-\frac{dm}{dt} = K(m - m_{\infty})$$

soit par intégration

$$\text{Ln} \left(\frac{m - m_{\infty}}{m_0 - m_{\infty}} \right) = -K t$$

sur une durée de réaction finie Δt , on a :

$$\text{Ln} \left(\frac{m - m_{\infty}}{m_0 - m_{\infty}} \right) = -K \Delta t$$

si m_{∞} est petit, on peut considérer que

$$\text{Ln} \left(\frac{m - m_{\infty}}{m_0 - m_{\infty}} \right) = \text{Ln}(1 - \Delta m)$$

d'où $-\text{Ln}(1 - \Delta m) = K\Delta t$, soit $\text{Ln}(-\text{Ln}(1 - \Delta m)) = \text{Ln}(k_0\Delta t) - \frac{E}{R}$

Nous avons donc tracé $\text{Ln}(-\text{Ln}(1 - \Delta m))$ en fonction de $\frac{1}{T}$ à partir des résultats du tableau II.7.

Les points expérimentaux présentent une bonne corrélation linéaire, mais différente suivant qu'on considère la perte de densité ou la perte de masse. A partir de ces droites, on peut estimer E et k_0 puisqu'elles ont une pente égale à $-\frac{E}{R}$ et une ordonnée à l'origine valant $\text{Ln}(k_0 \Delta t)$.

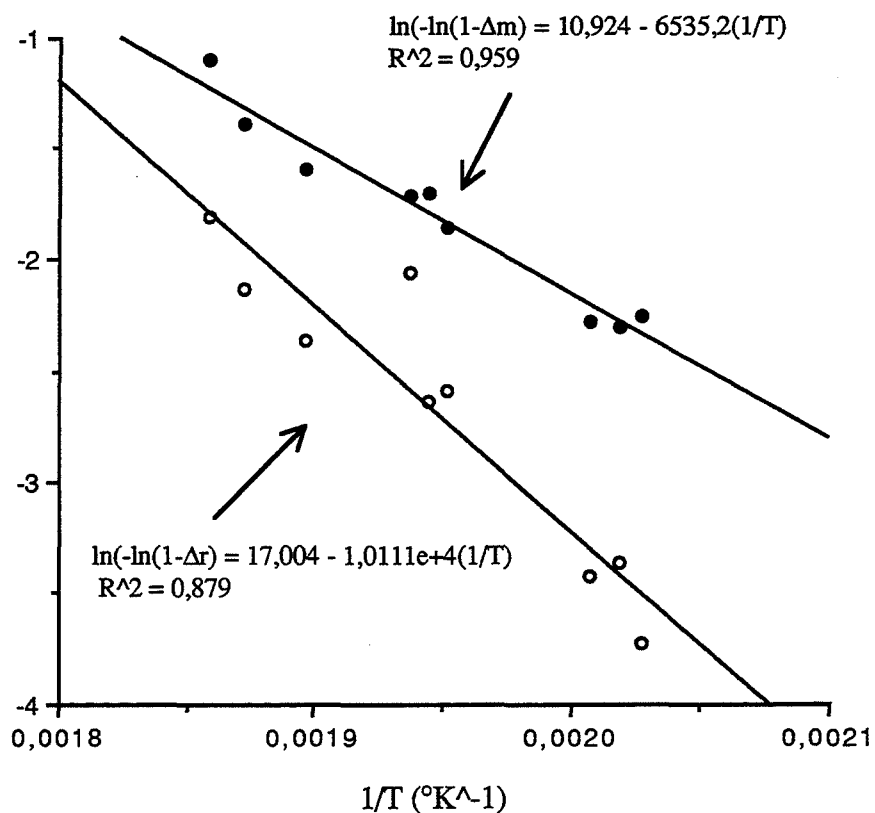


Figure II.17. Estimation des paramètres cinétiques avec l'hypothèse d'une cinétique homogène d'ordre 1.

Les résultats des corrélations linéaires donnent une énergie d'activation de 54,3 kJ pour la cinétique de perte de masse et de 84 kJ pour la cinétique de perte de densité; les constantes de temps associées valent respectivement $3,7 \cdot 10^3 \text{ mn}^{-1}$ et $1,6 \cdot 10^6 \text{ mn}^{-1}$.

II.2.2 1.2. Mesure des champs de température au centre

Plusieurs profils de température au centre ont été mesurés pour trois températures de consigne 220 ° C - 240 ° C et 260 ° C. La figure II.18 donne les profils moyens au centre, ainsi que les écarts-types (les autres mesures n'ont pas été retenues pour les raisons déjà exposées).

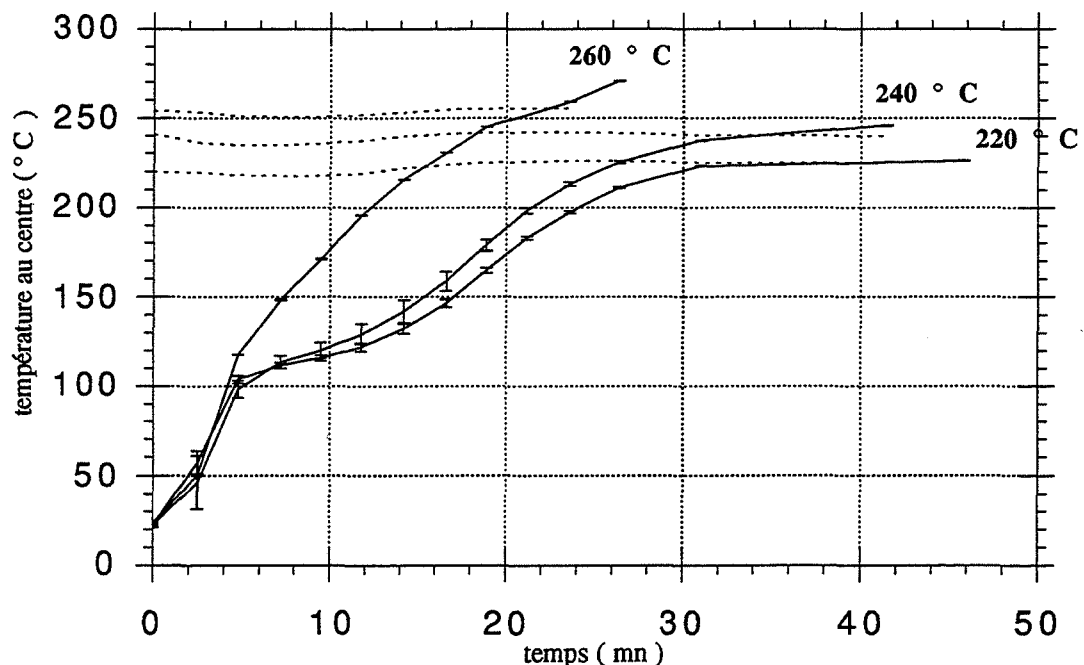


Figure II.18. Evolution de la température au centre pour différentes températures de bain - Cylindres de peuplier - diamètre 32 mm - humidité 12 % -

La montée en température est identique pour les trois températures de bain jusqu'à 100 ° C. A cette température, la courbe présente un fléchissement d'autant plus marqué que la température de consigne est basse. La courbe rejoint ensuite la température de consigne, ce d'autant plus rapidement que la consigne est élevée, puis la dépasse. La rupture de pente vers 100°C peut être expliquée par un phénomène de vaporisation de l'eau contenue dans le bois. Le dépassement de la température de consigne indique que dans ce domaine de température, il y a des réactions exothermiques. Elles n'apparaissent franchement que pour les températures supérieures à 240° C (à 220° C, la courbe rejoint asymptotiquement la température de consigne).

II.2.2.2. Facteurs d'influence

Afin de cerner plus précisément l'influence conjointe de la température du bain et du diamètre du cylindre, une nouvelle série d'expériences a été effectuée sur des cylindres de peuplier pour trois diamètres 32, 42 et 52 mm et pour deux températures de consignes: 230 ° C et 260 ° C.

Notre objectif initial était de ne considérer que des échantillons "secs", c'est-à-dire à des humidités inférieures à 12 %. Nous avons changé d'avis et décidé de considérer l'influence de l'humidité pour deux raisons: la première est qu'une fois prises les précautions pour l'implantation des thermocouples, il apparaît aux alentours de 100 ° C un changement de pente des profils, quels que soient les échantillons et plus ou moins marqué selon l'humidité du matériau, que nous avons attribué à un phénomène d'évaporation de l'eau contenue dans le bois. Il paraît donc difficile de négliger la présence d'humidité dans l'étude des transferts. La deuxième est que le bois nous a été livré à l'état vert et il nous a donc fallu le sécher. Or au cours du séchage, malgré les précautions que nous avons prises et un cycle de séchage adapté (tab.II.8), de nombreux défauts sont apparus: fentes, distorsion, collapse. Pour éviter cette phase délicate que nous ne maîtrisons pas correctement et gagner du temps, nous avons choisi de traiter directement les échantillons humides et de suivre l'évolution de leur gradient de température dans la section transversale. Le résultat fut très positif. Les bois traités ainsi présentaient beaucoup moins de défauts que les bois séchés traditionnellement, et nous économisons le temps de la phase du séchage programmée au minimum à deux semaines.

durée du séchage (j)	humidité réelle du bois (%)	température de séchage (° C)	taux d'humidité relatif de l'atmosphère (%)
3	> 100	45	90
4	80	55	81
3	50	70	45
5	40	95	36

Tableau II.8 . Programmation du cycle de séchage (d'après Joly et Chevalier, 1980)

II.2.2.2.1 Résultats expérimentaux

II.2.2.2.1.1. Allure générale des courbes $T(t)$ pour différents rayons et $T(r)$ pour différents temps

Nous présentons ici les courbes d'évolution de la température pour différents rayons dans le cas d'un bois "sec" et d'un bois "humide" pour un diamètre de 42 mm et une température de

consigne de 260 ° C. En règle générale, l'allure des courbes est identique dans les autres combinaisons de facteurs envisagées.

A/ cas du bois sec ($X < 12\%$)

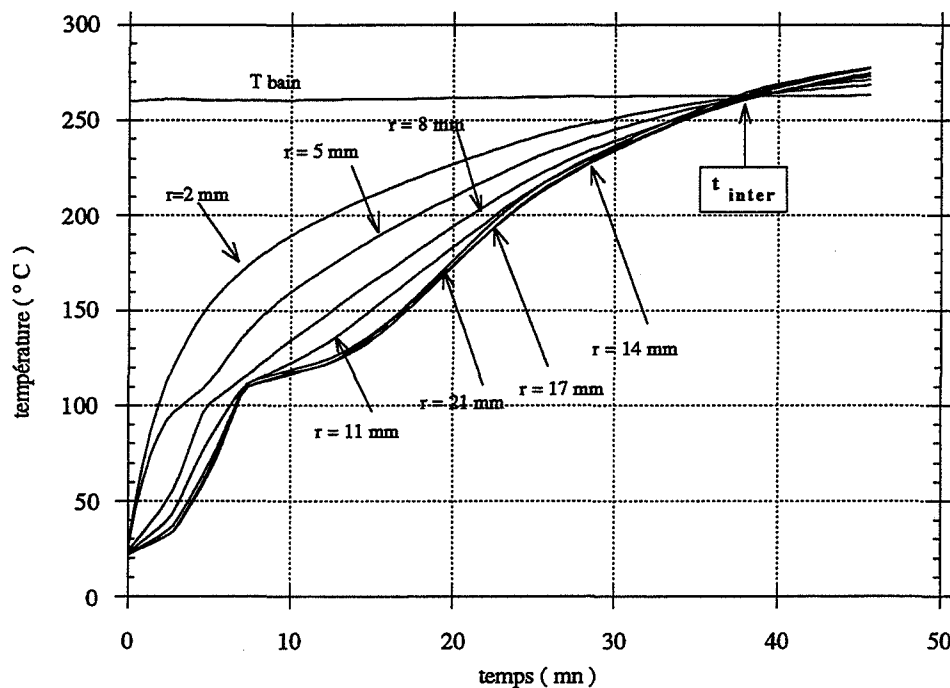
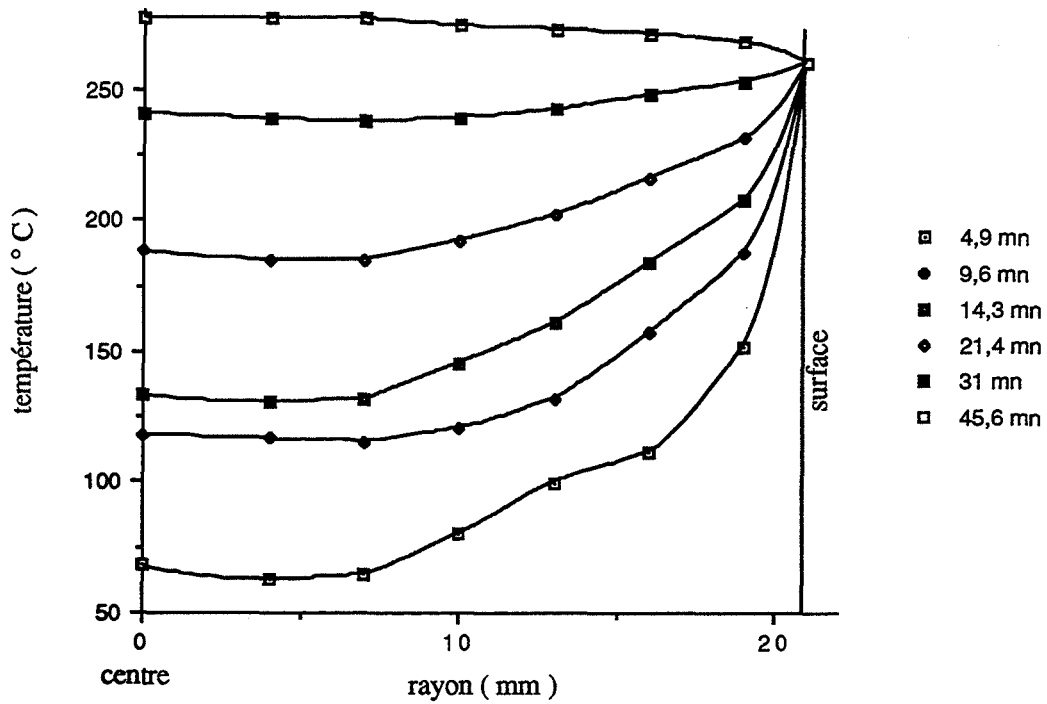


Figure II.19. $T = f(t, r)$ - Cylindre de peuplier "sec" - $\varnothing 42$ mm - $T_c = 260$ ° C

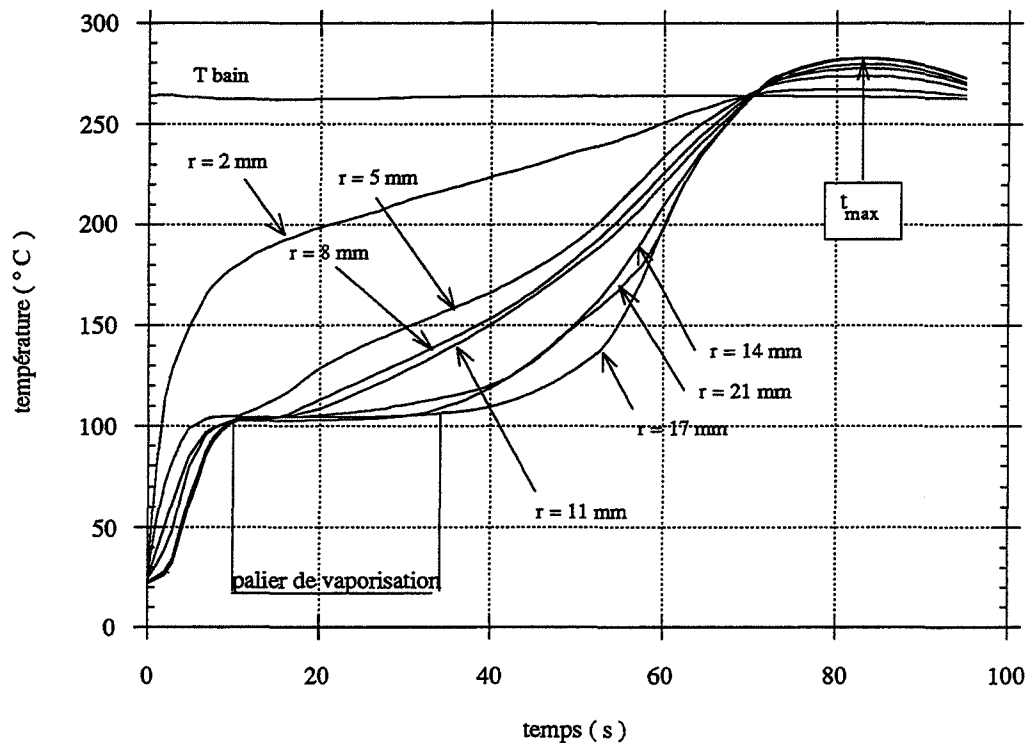
Pour un échantillon à faible taux d'humidité, les phénomènes de vaporisation et de transport de l'eau sous forme liquide et vapeur se traduisent par un ralentissement aux alentours de 100 ° C de la montée en température et un "coude" sur les courbes. Cet effet n'est pas perceptible pour le thermocouple proche de la surface, car le transport d'eau s'y fait quasi-instantanément avec une grande surface d'échange. On peut remarquer que jusqu'au rayon de 8 mm, la température à laquelle la courbe marque un arrêt est 102 - 103 ° C tandis que pour les rayons plus proches du centre, elle est plus élevée et se situe autour de 112 ° C. D'autre part, les courbes pour les trois derniers rayons proches du centre sont difficiles à distinguer. On observe cependant que la température au centre, soit à 21 mm de la surface, est légèrement supérieure à celle mesurée à 17 et 14 mm. Les courbes atteignent toutes la température du bain au même temps que nous avons appelé t_{inter} et la dépassent. Elles atteignent ensemble un maximum au temps t_{max} , puis décroissent

pour rejoindre asymptotiquement la température du bain quand toute la masse active du bois a réagi .

Nous avons également tracé les profils de température en fonction de la position du thermocouple (fig.II.20):



On remarque que les courbes présentent dans les premiers temps une inflexion: on peut penser que la vapeur d'eau générée par les processus de séchage s'oppose au flux de chaleur entrant et ralentit la montée en température.

B/ Cas du bois humide.($X \cong 100\%$)Figure II.21. $T = f(r, t)$ - Cylindre de peuplier humide - $\varnothing 42\text{ mm}$ - $T_c = 260^\circ\text{C}$

La présence d'eau se traduit par l'existence de paliers de vaporisation, d'autant plus longs que l'on s'éloigne de la surface. Le palier se situe aux alentours de 100°C , soit la température d'ébullition de l'eau libre à la pression atmosphérique. Les courbes rejoignent également la température de consigne au même point et la dépassent, mais le temps pour y parvenir est plus long que dans le cas du bois sec. De même, l'écart à la température du bain est supérieur à celui du bois sec. La température du centre à 21 mm est également supérieure à celles des rayons 14 et 17 mm et le palier plus court.

L'observation des profils de température en fonction du rayon (fig.II.22) montre qu'ils sont beaucoup moins réguliers que dans le cas du bois sec. On visualise également le palier de vaporisation dans les premiers temps. Par contre, on distingue après deux zones spatiales: de la surface jusqu'à 10 mm, la température décroît, les inflexions étant selon nous dues aux phénomènes de convection de la vapeur d'eau. Elle atteint le palier, puis réaugmente. Le point de séparation des deux zones se déplace au cours du temps. Pour que la température au centre

dépasse la température à des rayons supérieurs, la seule explication possible est le démarrage d'une réaction exothermique (les propriétés du matériau n'ayant pas suffisamment évolué pour présenter le phénomène décrit par Kung dans le paragraphe précédent). On vérifie dans ce cas les observations déjà faites dans la littérature que pour un bois humide, les réactions exothermiques démarrent plus tôt. Nous pensons que, à la séparation entre les deux zones, il y a deux directions opposées de flux de vapeur d'eau : une partie de la vapeur se dirige vers la surface et ralentit la conduction de chaleur, tandis que l'autre se dirige vers le centre, plus froid, pour s'y recondenser et le flux convectif s'ajoute au terme de conduction. De plus, il semble que l'eau accélère les réactions de décomposition sans doute en activant des réactions d'hydrolyse .

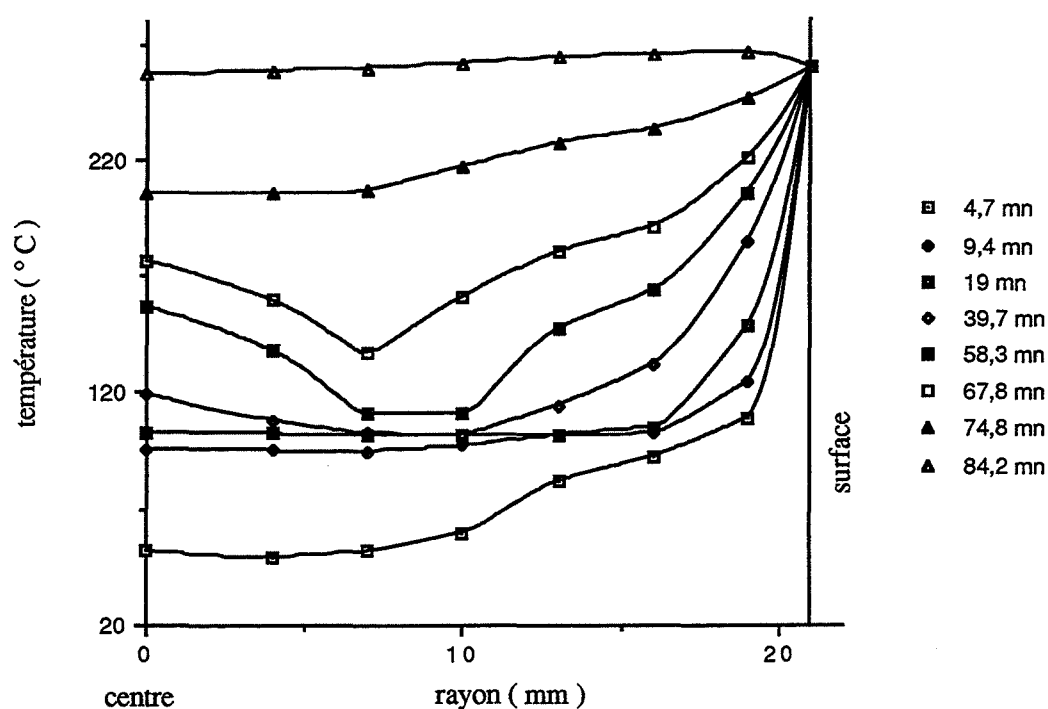


Figure II.22. Profils de température en fonction du rayon pour différents temps cylindre de peuplier humide - \varnothing 42 mm - $T_c = 260^\circ \text{C}$

II.2.2.2.1.2 Résultats

Les taux d'humidité mesurés l'ont été sur dix échantillons témoins extraits du matériau brut, puis amenés à l'état anhydre dans un four à 103°C . La série des "secs" présente une dispersion sur la valeur de l'humidité beaucoup plus faible (8 %) que la série des "humides" (23 %). Par

conséquent, afin d'estimer le taux réel dans l'échantillon, nous l'avons calculé à partir de la formule suivante, valable pour un bois au-dessus du point de saturation des fibres:

$$\rho_H = \rho_0 \frac{(1+X)}{(1+\alpha_V)}, \text{ d'où } X_c = (1 + \alpha_V)(\rho_H - \rho_0) - 1$$

Nous avons pris pour densité anhydre du peuplier celle que nous avons mesurée sur les échantillons mis à l'étuve, soit ρ_0 peuplier = 391 kg/m³ et nous avons pris α_V peuplier = 0,0058 à partir de la littérature (Guitard, 1987). Bien sûr, il peut exister des fluctuations dans la valeur de ρ_0 et une grande imprécision sur celle de α_V , mais elle nous permet d'estimer le taux d'humidité réel de l'échantillon quand celui-ci contient beaucoup d'eau.

	X _m (%)	T _c (°C)	Ø (mm)	ρ _i	ρ _f	Δm (%)	ΔV (%)	Δρ (%)	t _{inter} (mn)	t _{max} (mn)	ΔT _m (°C)	X _c (%)
S E C	6,5 ± 0,5	230	32	408	394	10,4	7,8	3,1	31	38	3	
			42	405	397	8,8	6,6	2,0	49	54	8	
			52	374	385	4,7	7,4	- 2,9	65	75	10	
		260	32	401	362	14,9	5,8	9,7	19	30	13	
			42	495	470	14,1	9,6	5,0	39	49	15	
			52	410	398	13,4	10,8	3,0	53	65	21	
H U M	80 ± 18	230	42	442	385	21,3	9,8	13,0	68	75	6	51
			42	483	396	27,5	11,6	18,0	80	86	7	92
		260	42	500	346	39,9	13,3	30,8	70	78	20	110
			42	551	395	43,8	21,5	28,3	87	94	20	171

Tableau II.9. Résultats de la deuxième série - cylindres de peuplier

Le tableau II.9 donne pour les différentes configurations de facteurs la perte de masse, la perte de densité ainsi que la variation volumique ΔV, le temps d'intersection des courbes de températures avec la température du bain, l'écart maximal à la température du bain, les taux d'humidité mesurés sur les témoins et les taux d'humidité calculés pour la série humide.

II.2.2.2. Discussion sur l'influence des facteurs

II.2.2.2.1. Influence du diamètre de l'échantillon

Les profils de température pour les deux températures de bain et les différents rayons sont donnés dans les figures II.23 et II.24.

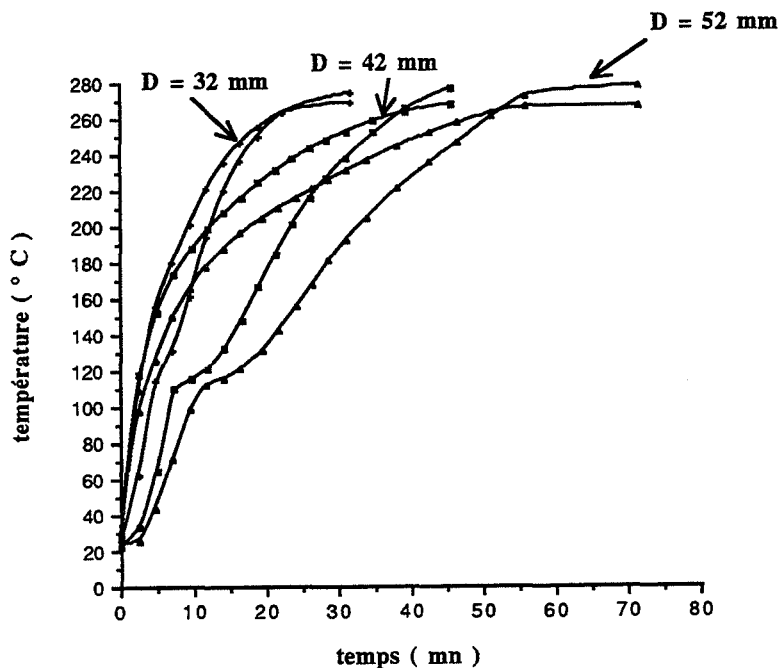


Figure II.23 Profils de température pour différents diamètres - peuplier " sec "
- $T_c = 260^\circ \text{C}$

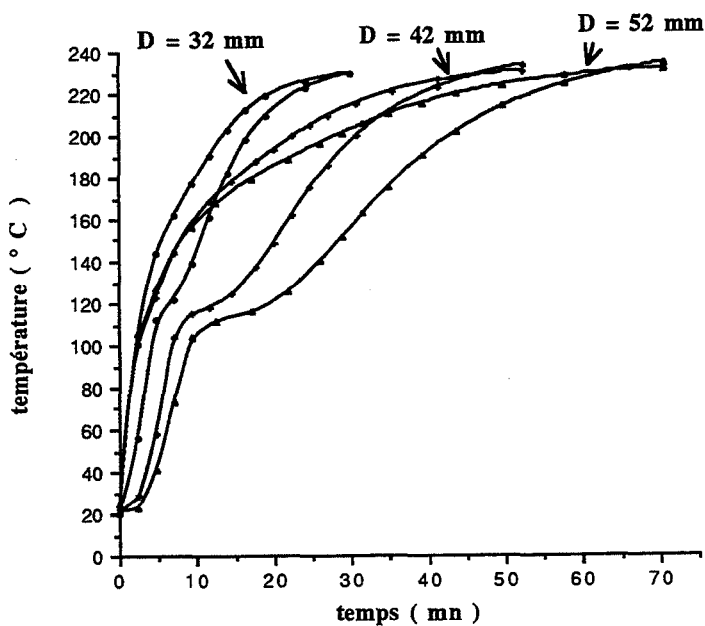


Figure II.24. Profils pour différents diamètres - peuplier " sec " - $T_c = 230^\circ$

Si l'on trace les temps d'intersection en fonction du carré du rayon (fig.II.25), on observe un écart à la relation linéaire qui serait obtenue si le processus était uniquement gouverné par la loi de conduction de Fourier. Le processus exothermique de réaction accélère la conduction. Par ailleurs, l'estimation de la diffusivité thermique par corrélation linéaire sur les trois points de mesure donne pour 230°C une valeur de $0,82 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et pour 260°C $0,83 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, soit une valeur environ cinq fois plus élevée que celle relevée chez Kollmann (cf § I. Tab.I.6)

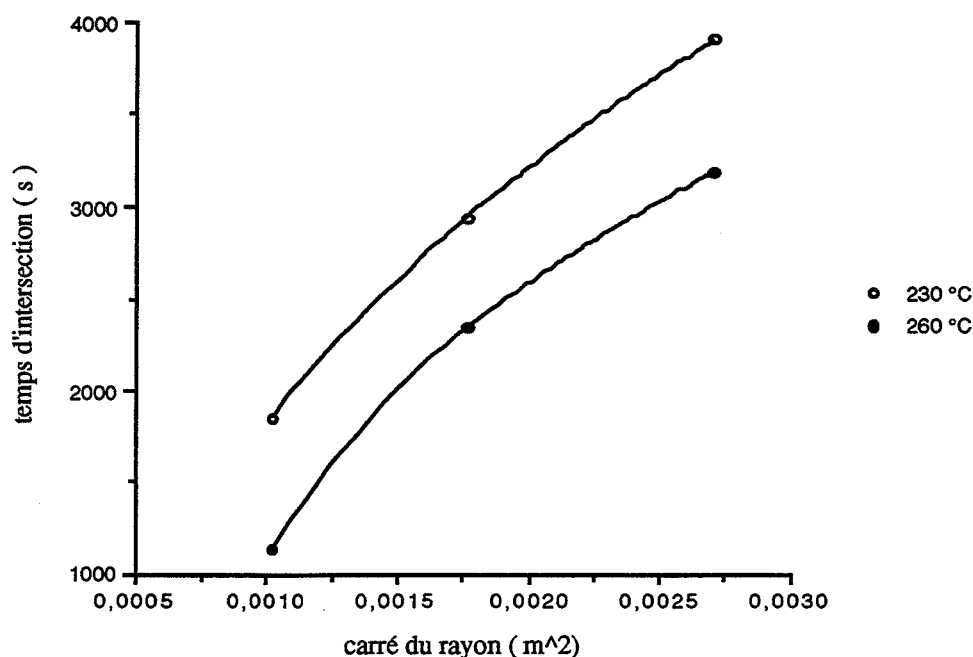


Figure II.25. Temps d'intersection fonction du carré du rayon

II.2.2.2.2. Influence de l'humidité

La présence d'humidité ralentit la montée en température (fig.II.26), car il faut fournir de l'énergie pour évaporer l'eau. Plusieurs mécanismes de transport de l'eau interviennent. Dans le domaine de l'eau liée, il y a diffusion de l'eau liquide et en cas de gradient de pression, convection forcée. Si le bois contient de l'eau libre, la phase liquide migre par effets capillaires selon une loi similaire à la diffusion. L'existence éventuelle d'un gradient de pression y ajoute des phénomènes de filtration. L'eau libre sous forme vapeur est évacuée à la fois par diffusion et convection forcée. De plus, comme nous sommes à des températures largement supérieures aux températures d'ébullition de l'eau libre ou liée, on observe essentiellement des phénomènes de vaporisation lorsqu'on atteint la température d'équilibre eau-vapeur. On peut donc distinguer deux régimes suivant que l'on se trouve au-dessus du point de saturation des fibres ou en-dessous.

Le séchage s'effectue en deux phases: dans la première phase, on observe une vaporisation de l'eau libre à la température d'équilibre eau-vapeur correspondant à l'état de l'eau liquide sous la pression atmosphérique, soit 100°C qui se traduit sur les courbes par un palier tant qu'il subsiste de l'eau à l'état libre. Puis, quand elle a été complètement évacuée, l'équilibre eau liée-vapeur suit une loi $P_{\text{phase gazeuse}} = P_{\text{vs}}(T) f(X, T)$, qui implique une température d'ébullition plus élevée et qui varie en fonction de X (cf §II.1.7.4). A ce moment, la température d'ébullition n'est plus constante et évolue avec la variation du taux d'humidité Ceci peut expliquer que pour le bois sec, on n'observe pas de palier et que la température de changement de pente se situe à 112 °C au lieu de 100°C, bien qu'une autre explication possible pour cette augmentation de la température d'ébullition de l'eau puisse être l'existence d'une surpression dans le matériau (à titre indicatif, Basilico et Martin (1984) avaient mesuré une pression relative maximale de 1 atm dans une planche de bois séchée à 184° C).

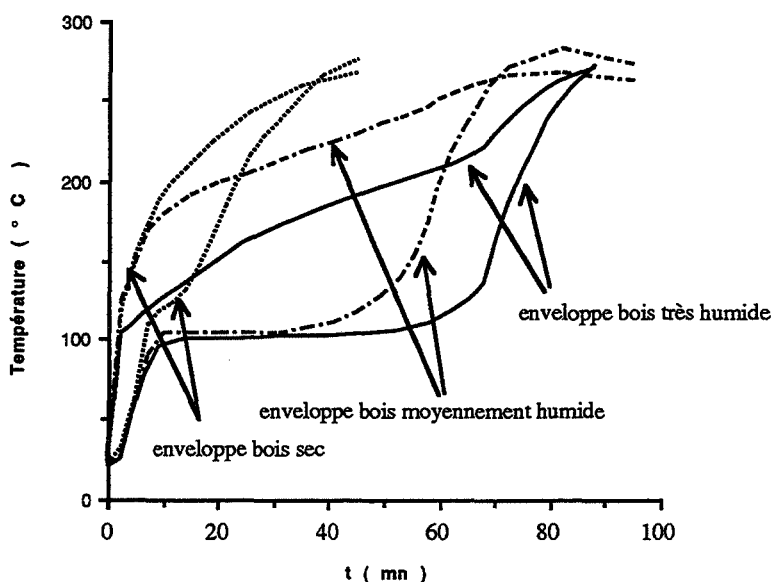


Figure II.26. Comparaison des profils de température pour différentes humidités
 $T_c = 260^\circ \text{C} - \varnothing 42$

Le tracé de la longueur du palier d'évaporation en fonction du diamètre décèle le même phénomène de séparation en deux zones spatiales déjà mentionné. Le rayon "critique" où la longueur du palier est maximale dépend bien sûr du diamètre de l'échantillon (fig.II.27).

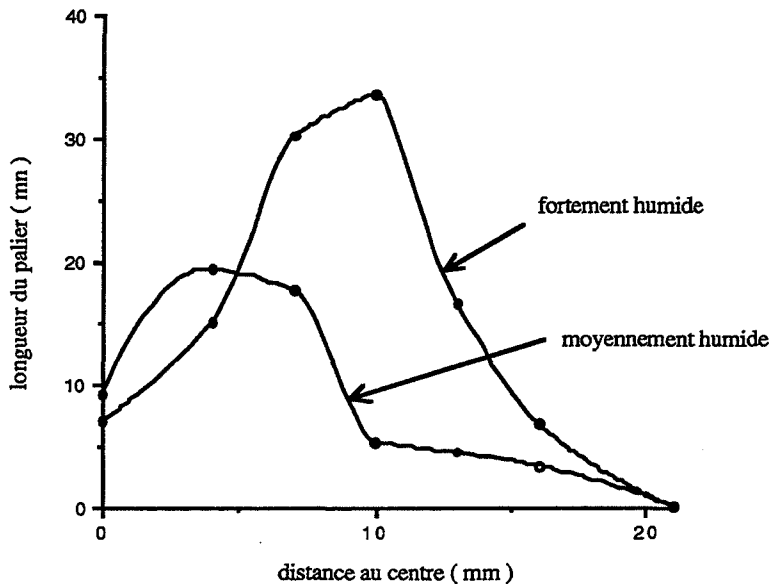


Figure II.27. Longueur du palier de vaporisation en fonction du rayon cylindre de peuplier - $\varnothing 42$ - $T_c = 260^\circ\text{C}$

I.2.2.2.3 Exothermicité de la réaction de pyrolyse

A notre avis, il ne fait aucun doute que vers 180°C - 200°C , des réactions exothermiques démarrent. Nous avons cherché à estimer l'influence des différents paramètres sur l'enthalpie de ces réactions en considérant l'évolution de l'écart maximal à la température de consigne en fonction du rayon. Comme le montrent les figures II.28 et II.29, cet écart dépend à la fois du diamètre du cylindre et de son taux d'humidité, augmentant avec l'un et l'autre. La première dépendance accrédite l'hypothèse de réactions exothermiques secondaires des gaz de pyrolyse, car leur temps de résidence augmente avec le diamètre. D'autre part, l'influence de l'humidité est de façon générale un abaissement des barrières de potentiel, donc les réactions démarrent plus tôt et plus d'énergie est dégagée. On voit que l'écart maximal à la température de consigne peut atteindre dans le cas le plus défavorable jusqu'à 21°C .

Là-aussi, l'existence d'un maximum en fonction du rayon, surtout visible pour un diamètre de 52 mm laisse penser que le flux convectif des gaz de réactions ne va pas forcément du centre vers la surface.

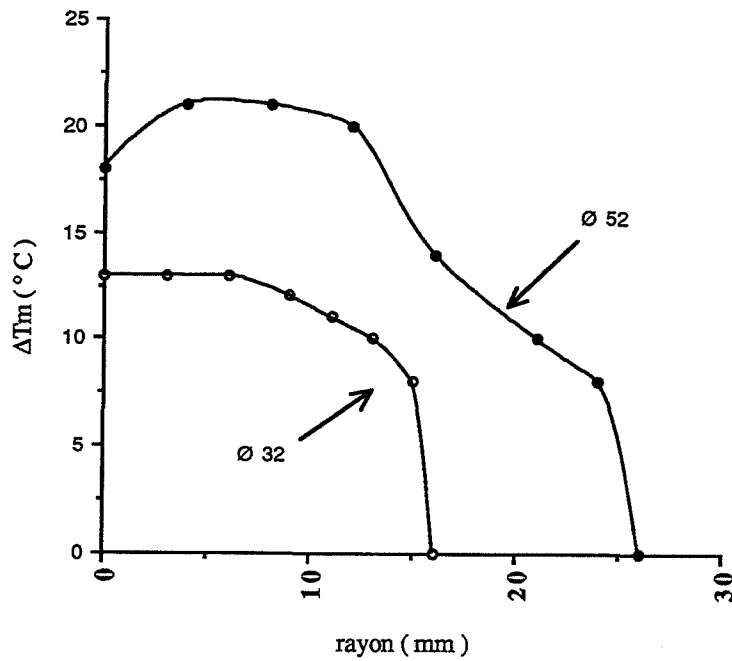


Figure II.28. Ecart maximal à la température de consigne en fonction du rayon
Cylindre de peuplier sec - $T_c = 260^\circ\text{C}$

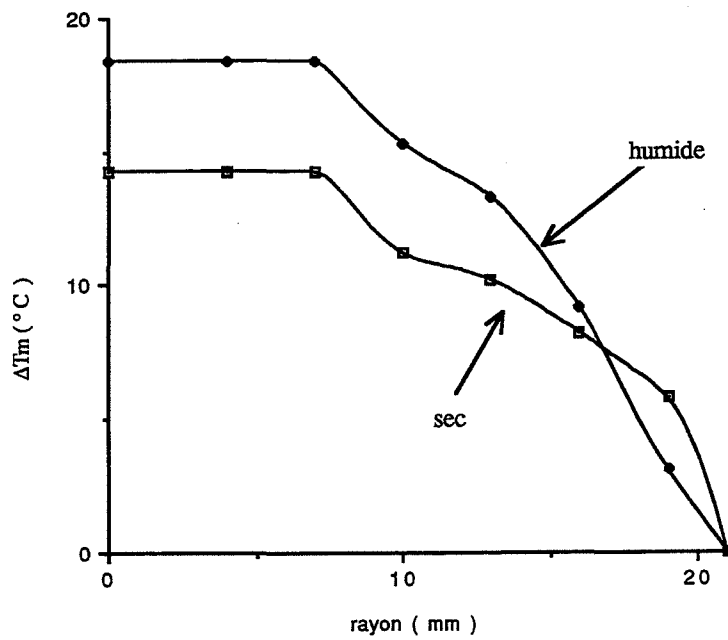


Figure II.29. Ecart maximal à la température du bain en fonction du rayon
cylindre de peuplier - $\varnothing 42$ - $T_c = 260^\circ\text{C}$

II.2.2.3. Plan d'expérience

II.2.2.3.1 Description du plan d'expérience

Comme nous venons de le voir, plusieurs facteurs peuvent jouer sur le déroulement de la pyrolyse isotherme d'un barreau de bois: la température, le diamètre de l'échantillon, l'humidité initiale du cylindre, l'essence du bois et la nature du bain. Une étude systématique de chacun de ces facteurs entrainerait l'obligation de réaliser un très grand nombre d'essais. Un plan d'expérience (Goupy, 1988) permet de faire varier ces facteurs à chaque essai de manière programmé et de réduire considérablement le nombre d'essais. Le but d'un plan d'expérience est d'obtenir le maximum d'information avec une efficacité maximale en limitant le nombre d'essais expérimentaux. Au contraire des schémas d'expérimentation classiques où on fait varier un seul paramètre, les autres étant fixés, cette méthode fait varier ensemble tous les facteurs (un facteur étant une variable influant sur la réponse mesurée) entre des valeurs minimales et maximales.

Il impose de choisir des valeurs extrêmes (niveau haut, niveau bas), pouvant être continues comme par exemple ici, la température, ou des grandeurs discrètes ou qualitatives, comme ici l'essence du bois (feuillu ou résineux). Pour chaque valeur, on fait l'hypothèse que la réponse varie linéairement entre ces deux valeurs. Cette hypothèse est grossière, mais en calculant à partir d'une matrice d'Hadamard les effets des facteurs étudiés et leurs interactions, elle permet d'établir une hiérarchie des facteurs d'influence. Nous avons fait varier les paramètres selon un plan d'expérience complet 2^5 dont les facteurs varient de la façon suivante :

- température de consigne: 220° C/250° C
- diamètre et longueur du cylindre: Ø32mm, L=100 mm/Ø52 mm, L=160 mm
- humidité initiale du bois: sec/humide
- essence du bois: peuplier (feuillu)/pin (résineux)
- nature du bain: paraffine/huile

Si nous avons reçu un matériau de base à l'état vert, ce matériau stocké à l'air libre au cours des expériences s'est séché naturellement et quand nous avons voulu lancer notre plan d'expérience, nous avons constaté que notre bois était "trop sec". Nous avons voulu augmenter l'humidité des échantillons jusqu'au point de saturation des fibres, c'est-à dire aux environs de 30%. Pour cela, il fallait ajuster les paramètres d'équilibre, température et humidité relative de l'air aux valeurs qui correspondent à l'humidité réelle du bois à partir d'une abaque. En consultant les abaques des courbes d'humidité d'équilibre du bois, on trouve que pour stabiliser le bois à une humidité de 30%, il faut un environnement en température de moins de 20° C et en humidité relative de 99% .

Malheureusement, il n'était pas possible de conditionner le bois de manière souhaitée puisque notre enceinte ne peut pas dépasser une humidité de 96%. En outre pour parvenir à cette humidité, il faut monter la température jusqu'à 70°C, ce qui produit l' effet contraire, car l'humidité

d'équilibre du bois diminue quand la température augmente. A la suite de pannes répétées sur l'enceinte, il a fallu régulièrement éteindre l'appareillage. En conséquence, nos taux d'humidité ne franchissent pratiquement pas la limite des 20% et niveaux haut et bas du plan se chevauchent.

II.2.2.3.1 Résultats

Les résultats du plans sont résumés dans le tableau II.9. Nous avons choisi d'étudier comme réponses le temps d'intersection des courbes avec la température de consigne t_{inter} , la perte de masse ($\frac{M_f - M_o}{M_o}$) et la perte de densité ($\frac{\rho_f - \rho_o}{\rho_o}$).

		hulle						paraffine						
Peuplier	bois humide													
	σ	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	
	32	11	220°	7,7	44	-0,9	7,0	16	220°	13,8	36	8,7	15,0	
		13	250°	13,3	31	12,2	21,8	20	250°	9,2	27	10,3	16,7	
	52	41	220°	6,8	88	4,3	9,8	6	220°	21,3	88	5,9	13,9	
		5	250°	17,8	59	8,8	19,7	7	250°	15,4	66	11,2	24,5	
	bois sec													
	σ	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	
	32	14	220°	4,6	35	-3,9	6,7	19	220°	10,8	36	4,5	8,6	
		15	250°	6,8	27	7,3	14,0	17	250°	5,9	30	8,9	19,8	
52	42	220°	6,3	89	3,1	8,6	9	220°	11,5	79	3,5	9,4		
	43	250°	7,2	67	10,5	18,6	10	250°	10,5	65	10,1	18,6		
Pin	bois humide													
	σ	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	
	32	31	220°	8,7	47	0,2	11,7	36	220°	9,2	40	2,1	12,8	
		32	250°	13,0	36	2,7	13,3	37	250°	13,6	35	7,1	18,2	
	52	21	220°	13,9	98	3,6	12,2	26	220°	13,7	95	5,7	14,4	
		22	250°	8,1	87	9,8	19,2	27	250°	9,2	81	10,4	20,9	
	bois sec													
	σ	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	n°	T	X	\bar{u}_{min}	$\Delta\rho\%$	$\Delta m\%$	
	32	34	220°	7,7	42	-0,2	5,4	39	220°	8,6	41	2,3	9,0	
		38	250°	4,6	39	5,9	12,9	40	250°	7,9	27	5,4	12,4	
52	24	220°	8,3	95	1,2	7,6	23	220°	5,8	91	2,9	11,0		
	28	250°	8,1	79	7,9	16,2	30	250°	6,0	69	7,4	16,5		

Tableau II.9. Résultats du plan d'expériences

II.2.2.3.2. Calcul des effets

La combinaison des facteurs pour chaque expérience se trouve à partir de la matrice d'expériences de la forme suivante (les signes + correspondent à +1 et - à -1) :

numéro de l'essai	température 1	épaisseur 2	humidité 3	essence 4	bain 5
14	-	-	-	-	-
15	+	-	-	-	-
42	-	+	-	-	-
43	+	+	-	-	-
11	-	-	+	-	-
13	+	-	+	-	-
41	-	+	+	-	-
5	+	+	+	-	-
34	-	-	-	+	-
38	+	-	-	+	-
24	-	+	-	+	-
28	+	+	-	+	-
31	-	-	+	+	-
32	+	-	+	+	-
21	-	+	+	+	-
22	+	+	+	+	-
19	-	-	-	-	+
17	+	-	-	-	+
9	-	+	-	-	+
10	+	+	-	-	+
16	-	-	+	-	+
20	+	-	+	-	+
6	-	+	+	-	+
7	+	+	+	-	+
39	-	-	-	+	+
40	+	-	-	+	+
23	-	+	-	+	+
30	+	+	-	+	+
36	-	-	+	+	+
37	+	-	+	+	+
26	-	+	+	+	+
27	+	+	+	+	+

niveau -	220° C	Ø 32	sec	peuplier	huile
niveau +	250° C	Ø 52	humide	pin	paraffine

Tableau II.11. Plan d'expérience complet à cinq facteurs

La matrice des effets permettant de calculer les effets globaux de chaque facteur et la valeur des interactions entre les différents effets comprend les éléments suivants :

- une colonne-moyenne remplie de signes +;
- les colonnes-effets des facteurs, qui sont les mêmes colonnes que celles de la matrice du plan d'expérience ;
- les colonnes des interactions entre les facteurs, chaque élément étant calculé à partir de la multiplication des effets des facteurs considérés (+ ou -). Pour l'interaction 12, par

exemple, on obtient les signes de la colonne en multipliant la $i^{\text{ème}}$ composante de la colonne 1 avec la $i^{\text{ème}}$ composante de la colonne 2.

Les effets globaux sont obtenus par moyennage:

- on multiplie chaque réponse par le signe correspondant de la colonne de l'effet ;
- on additionne les valeurs obtenues ;
- on divise cette somme par le nombre d'expériences .

Les effets ainsi obtenus caractérisent l'influence de chaque facteur et de chaque interaction sur la réponse. La valeur obtenue est l'effet moyen du facteur par rapport à un changement de facteur entre le niveau bas et le niveau haut. Un effet négatif signifie qu'une augmentation du facteur entraîne une diminution de la réponse.

réponse:	t_i	effet	Δm	effet	Δp	effet
moyenne:	58,4	global en %	14	global en %	5,6	global en %
1	-6,8	-23,3	3,8	54,3	2,9	103,6
2	22,5	77,1	1,1	15,7	1,1	39,3
3	1,5	5,1	1,7	24,3	0,8	28,6
4	4,2	14,4	-0,6	-8,6	-0,9	-32,1
5	-1,8	-6,2	1,1	15,7	1,1	39,3
12	-2,5	-8,6	0,4	5,7	0	0,0
13	-0,3	-1,0	-0,2	-2,9	-0,2	-7,1
14	0,8	2,7	-0,9	-12,9	-0,5	-17,9
15	0,2	0,7	-0,4	-5,7	-0,7	-25,0
23	0,3	1,0	0	0,0	0	0,0
24	1,7	5,8	0,3	4,3	0,4	14,3
25	0	0,0	-0,1	-1,4	-0,6	-21,4
34	0,8	2,7	0,3	4,3	-0,2	-7,1
35	0,4	1,4	0,2	2,9	0,2	7,1
45	-1	-3,4	-0,1	-1,4	-0,3	-10,7
123	0,2	0,7	0,2	2,9	-0,1	-3,6
124	0,7	2,4	0,2	2,9	0,4	14,3
125	0,2	0,7	0,2	2,9	0,5	17,9
134	1,2	4,1	-0,1	-1,4	0,1	3,6
135	0,7	2,4	-0,1	-1,4	0,1	3,6
145	-1,1	-3,8	0,2	2,9	0,4	14,3
234	0,8	2,7	-0,1	-1,4	0,7	25,0
235	1,1	3,8	0,3	4,3	0,1	3,6
245	-0,2	-0,7	0	0,0	0,3	10,7
345	0,2	0,7	0	0,0	0,1	3,6
1234	0,6	2,1	0	0,0	0,1	3,6
1235	-0,5	-1,7	0,4	5,7	0	0,0
1245	-0,4	-1,4	-0,4	-5,7	-0,7	-25,0
1345	0,6	2,1	0,8	11,4	0,3	10,7
2345	-1,1	-3,8	-0,5	-7,1	-0,3	-10,7
12345	-0,3	-1,0	-0,7	-10,0	-0,3	-10,7
estimation erreur-type	0,7		0,3		0,3	

Tableau II.12. Effets calculés sur le plan

L'estimation de l'erreur-type est calculée en faisant l'hypothèse que les interactions d'ordre supérieur à 2 sont négligeables et sont une estimation de l'erreur-type. En calculant la variance des interactions d'ordre supérieur à 2, on obtient l'écart-type sur les effets. Les valeurs des effets sont comparées à leur erreur pour estimer s'ils sont influents ou non.

II.2.2.3.3. Influence des différents facteurs

Influence des facteurs purs:

L'exploitation du plan d'expérience montre que deux facteurs sont négligeables par rapport à la réponse t_i : l'humidité et la nature du bain. Le fait que l'humidité ne semble pas jouer une influence sur le temps de séjour n' était pas prévisible. Ceci peut être dû à deux raisons:

1) La plage de l'humidité est trop petite pour qu'on puisse en tirer des conclusions sur l'influence de l'humidité.

2) En regardant les courbes pour différentes humidités, on remarque que la variation de la durée du palier existe surtout pour les zones centrales du cylindre. Pour les zones qui sont plus proches de la surface, le palier est par contre pratiquement inexistant. Pour un échantillon humide, l'écart de température entre les zones superficielles et les zones centrales à la fin du palier est plus grand que pour un échantillon sec, car dans le cas du bois humide, la surface a eu plus de temps pour monter en température. Cet écart occasionne un meilleur transport de la chaleur vers l'intérieur que pour le bois sec. De plus comme nous l'avons vu précédemment, l'exothermicité de la réaction chimique est plus élevée et les réactions démarrent plus tôt, donc la température au centre peut "rattraper le temps perdu".

Les facteurs qui ont par contre une influence sur la réponse (t_{inter}) sont la température, l'épaisseur et l'essence du bois. L'effet de l'épaisseur est le plus important, suivi par celui de la température et enfin de l'essence. Il semble donc que ce soient surtout les phénomènes de transfert de chaleur qui gouvernent la pyrolyse dans ces conditions. La réaction de pyrolyse joue également un rôle à travers l'effet de température et l'effet de l'essence.

L'effet de l'augmentation de la température sur la perte de la masse (effet global: 54,3%) et la perte de la densité (effet global 103,6%) est l'effet prépondérant. Plus la température est élevée, plus la réaction est forte et plus le bois se dégrade. L'humidité semble avoir un effet sur la perte de masse, mais pas sur la perte de densité (on peut supposer que la perte de masse est alors compensée par la diminution de volume par retrait).

En ce qui concerne l'essence, on voit qu'en passant du peuplier (feuillu) au pin (résineux), le temps d'intersection augmente et les pertes de masse et de densité sont moins élevées. Le peuplier contient plus de produits légers et d'hémicelluloses que le pin, et donc son degré de conversion pour une température donnée est supérieur à celui du pin. En outre, on observe en général que les

températures de début de réaction exothermique sont plus élevées d'environ 20° C pour les résineux que pour les feuillus.

Interaction de deux facteurs:

L'observation des effets du second ordre montre que pour tinter, seule l'interaction T - épaisseur peut être considérée non-négligeable. Le couplage T - épaisseur sur le temps d'intersection est encore une conséquence d'un processus physique gouverné en temps par la conduction de chaleur.

Pour les interactions entre deux effets sur Δm et $\Delta \rho$, les valeurs ne sont pas significatives. Δm et $\Delta \rho$ dépendent avant tout de la température, ce qui serait bien l'indice d'une réaction chimique d'Arrhénius thermoactivée.

II.2.2.3.4 Comparaison pour un facteur donné

Afin de mieux visualiser l'effet des facteurs sur les profils de montée en température, nous présentons les comparaisons des enveloppes des courbes pour les facteurs pris deux à deux (la différence entre les deux bains est indécélable, c'est pourquoi nous ne la présentons pas) (fig.II.30, II.31,II.32.,II.33).

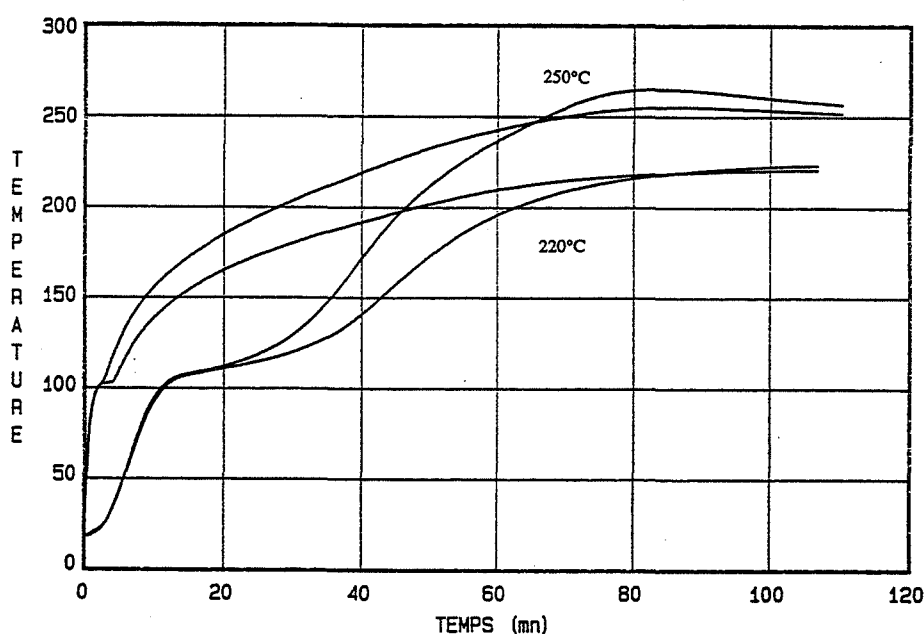


Figure II.30. Comparaison 220°C/250°C

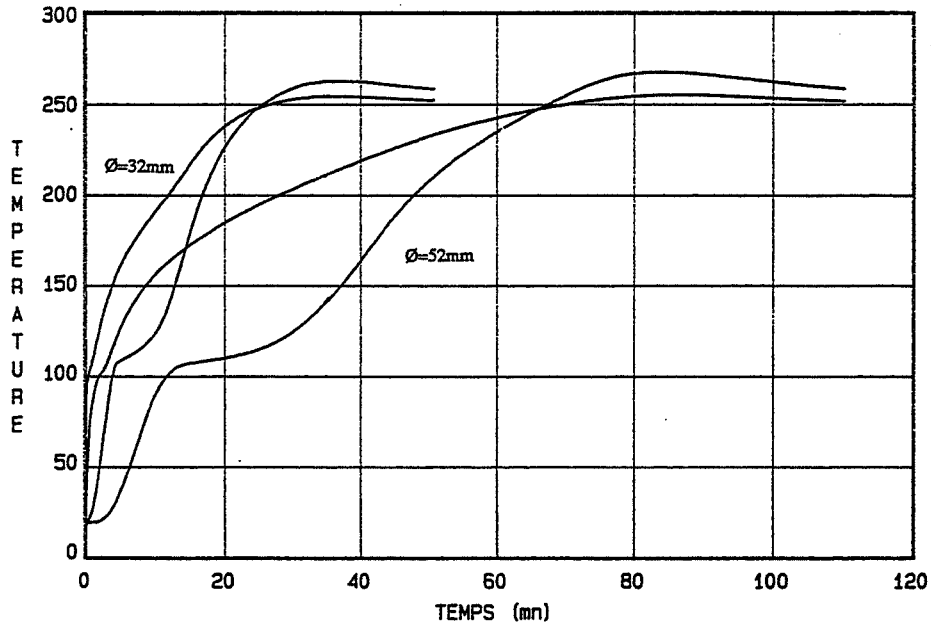


Figure II.31 Comparaison $\varnothing 32 / \varnothing 52$

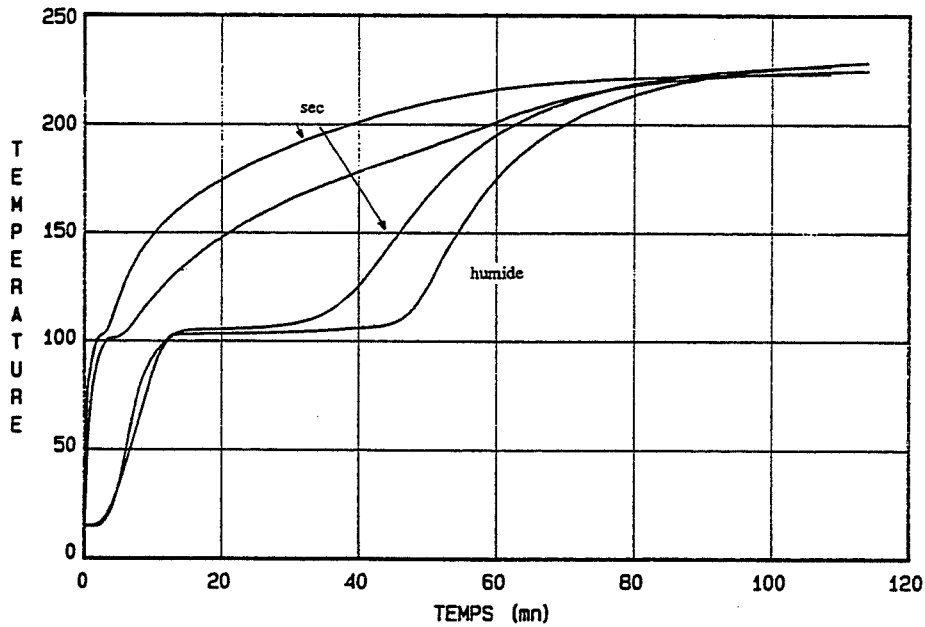


Figure II.32. Comparaison bois sec/ bois humide

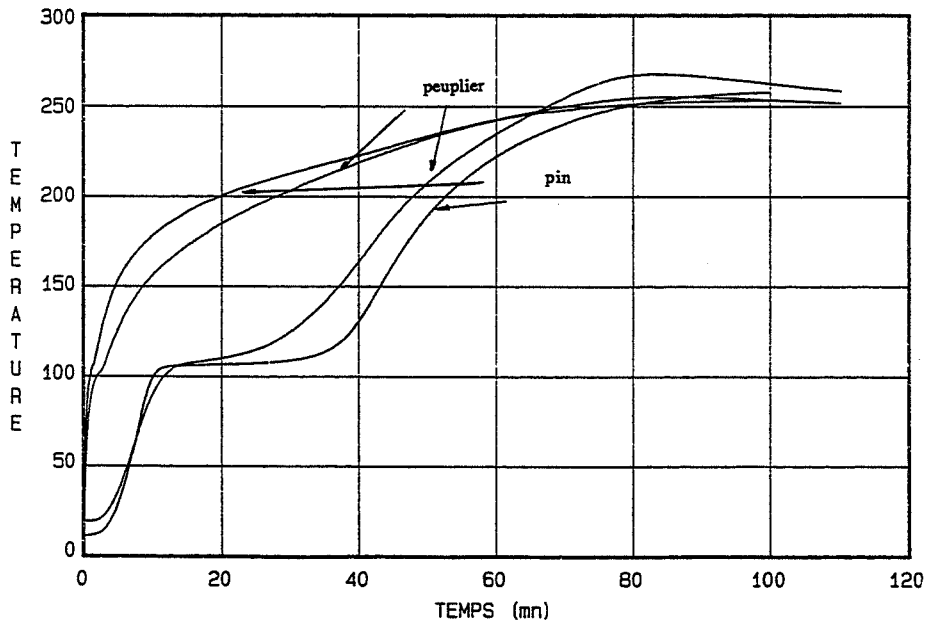


Figure II.33. Comparaison peuplier/pin

II.2.3. Analyse thermique par TG-DSC

Pour pouvoir développer un modèle numérique décrivant le procédé du réтификаion du bois et adapté aux conditions réelles de traitement, pour pouvoir comparer et éventuellement optimiser certains paramètres, il est nécessaire d'injecter dans ce modèle des valeurs fiables des paramètres cinétiques, ainsi que des valeurs de la capacité thermique en fonction de la température. Devant la grande dispersion des données de la littérature, nous avons essayé de mesurer en TG-DSC les paramètres suivants :

- la capacité calorifique du bois C_{pb}
- l'enthalpie de pyrolyse ΔH_p
- l'énergie d'activation E
- le facteur préexponentiel k_0

II.2.3.1. Mesure de la capacité calorifique

II.2.3.1.1. Principe

La chaleur spécifique (capacité calorifique) d'un échantillon à pression constante est donnée par la relation :

$$C_p = \left(\frac{dH}{dT} \right)_p$$

En différentiant par rapport au temps, on obtient:

$$C_p = \frac{\left(\frac{dH}{dt} \right)_p}{\left(\frac{dT}{dt} \right)_p}$$

Le terme:

$$\left(\frac{dH}{dt} \right)_p$$

correspond à une puissance thermique et est donné par le signal calométrique.

Le terme:

$$\left(\frac{dT}{dt} \right)_p$$

correspond à la vitesse de programmation de montée en température.

La chaleur spécifique est alors égale à:

$$C_p = \frac{\text{signal calométrique}}{\text{Etalonnage} \times \text{vitesse programmation}}$$

II.2.3.1.2. Expériences

Nous avons effectué nos mesures sur le thermoanalyseur TG-DSC 111 de SETARAMTM. Il se compose d'une unité de gestion et d'un ensemble couplant une microbalance au calorimètre DSC 111. Les échantillons sont des petits éclats de bois massif, de longueur taillée dans la direction transversale et de dimensions légèrement inférieures à celle du creuset, afin de conserver la structure du bois tout en négligeant les transferts de chaleur en se plaçant sous contrôle cinétique. Ils ont été préalablement séchés en étuve pendant deux jours pour atteindre l'état anhydre. Ils sont ensuite placés dans un creuset fermé en aluminium de diamètre 6 mm et de longueur 11 mm. On utilise pour chaque essai deux creusets, l'un vide et servant de référence pour la mesure du flux calorimétrique, l'autre contenant l'échantillon testé.

Deux essais en conditions expérimentales identiques sont nécessaires pour définir précisément le C_p :

- le premier est réalisé avec les deux cellules vides sans échantillon , c'est le blanc.
- le second est réalisé avec les mêmes cellules dont une contenant l'échantillon.

L'écart de signal calorimétrique entre les deux courbes caractérise la capacité calorifique de l'échantillon. Cette amplitude est directement convertie à toute température en puissance thermique en utilisant la courbe d'étalonnage du DSC ou du calorimètre.

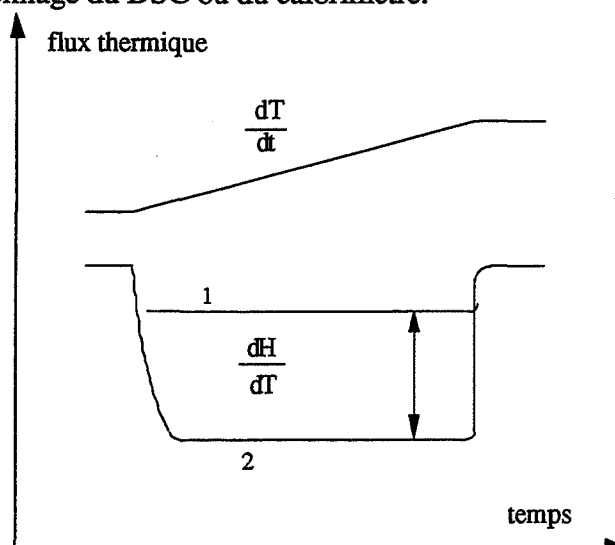


Figure II.34. Principe de mesure du C_p

La mesure de la capacité calorifique de cette manière n'est valable que si l'échantillon ne subit pas de réactions chimiques avec perte de masse. A ce moment, le flux de chaleur comprend en plus du terme se rapportant à C_p , un terme ΔH ($- dm/dt$) positif ou négatif suivant que la réaction est exothermique ou endothermique

II.2.3.1.3. Résultats

Nous avons mesuré le C_p du peuplier et du pin dans la gamme de températures 30°C - 240°C, sous balayage d'azote et avec une montée en température de 2°C par minute (fig.II.36 et fig II.37). Afin d'éliminer l'influence de la vaporisation endothermique de l'eau contenue dans le bois, qui subsiste malgré le séchage préalable en étuve, nous avons mesuré le C_p sur deux programmations successives en température pour chaque échantillon. Les courbes montrent que le C_p obtenu pour la deuxième chauffe est légèrement inférieur à celui de la première chauffe, ce qui confirme qu'il restait une petite quantité d'eau dans le bois.

En ce qui concerne le peuplier, nous ne retiendrons que les valeurs jusqu'à 210°C, car en ce point, le C_p s'annule (il y a donc réaction exothermique puisque C_p diminue!). L'ordinateur n'a pas retenu les valeurs négatives et les a remplacées par leurs opposées. Le C_p varie donc dans la gamme de 30°C-180°C (température supposée de début de réaction) entre 1,1 et 1,2 J/g ° K. La courbe présente un maximum de 1,5 J/ g °K pour une température de 130°C, puis elle décroît continûment jusqu'à devenir négative.

Dans ce domaine de températures, le C_p du pin est quasiment constant pour la deuxième chauffe et vaut 1,1 J/g ° K. Puis à partir de 150° C, elle diminue jusqu'à 0,5 J/ g° K à 240 ° C.

La décroissance peut être expliquée par un début de réaction exothermique ou bien l'indice du passage de la transition vitreuse .

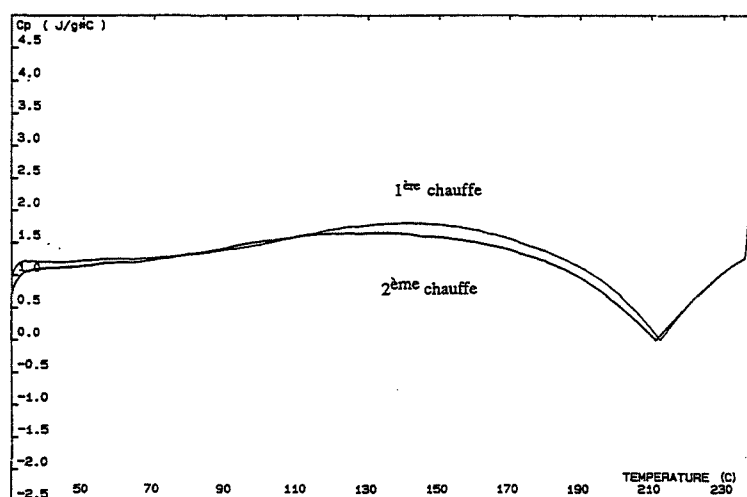


Figure II.35 Capacité calorifique du peuplier fonction de la température

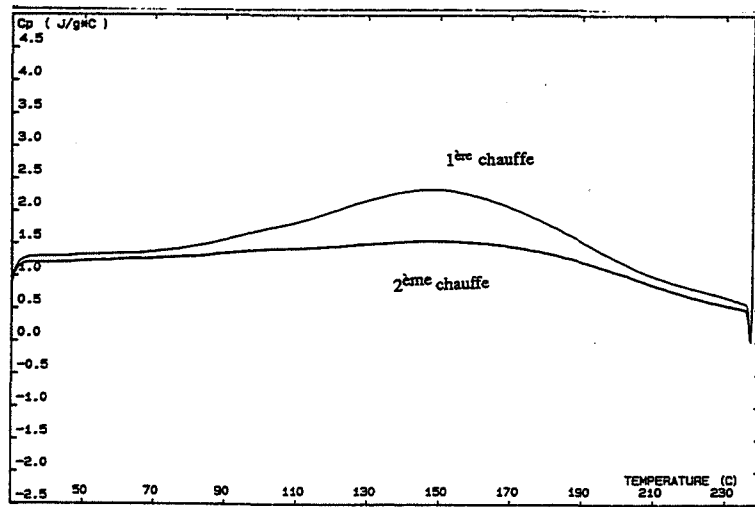


Figure II.36 Capacité calorifique du pin fonction de la température

II.2.3.2. Thermogravimétrie isotherme

II.2.3.2.1. Principe

Bien qu'ayant déjà déterminé une cinétique globale sur les expériences précédentes en considérant des échantillons massifs, nous avons cherché à analyser plus finement la cinétique en utilisant des méthodes analytiques thermogravimétriques. En théorie, la mesure de la perte de masse isotherme à différentes températures permet de calculer les paramètres cinétiques E (énergie d'activation) et k₀ (facteur préexponentiel) (cf § II.1). En supposant que la réaction est du premier ordre, la perte de masse suit l'équation différentielle:

$$\frac{d\alpha}{dt} = k (1 - \alpha) \tag{1}$$

où α est l'avancement de la réaction

$$\alpha = \frac{M_0 - M}{M_0 - M_\infty} \tag{2}$$

L'intégration de cette équation mène à :

$$\ln (1 - \alpha) = -k t \tag{3}$$

En traçant les valeurs de la perte de masse sous la forme ln (1 - α) en fonction du temps, on obtient une droite dont la pente est égale à -k.

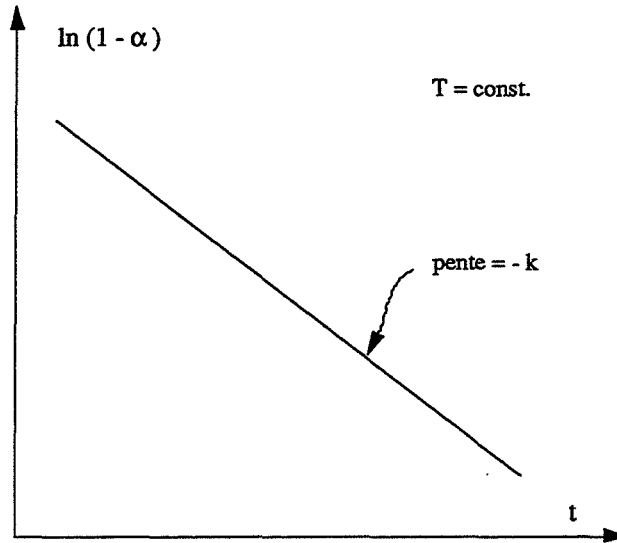


Figure II.37. Détermination de k

En déterminant la constante de vitesse pour plusieurs températures il est possible de calculer l'énergie d'activation E et le facteur préexponentiel k_0 .

Si on met l'équation d'Arrhénius $k = k_0 \exp\left(-\frac{E}{R T}\right)$ sous la forme suivante:

$$\ln k = -\frac{E}{R} \frac{1}{T} + \ln k_0 \quad (8)$$

Le graphe d'Arrhénius ($\ln k, 1/T$) est en théorie pour une cinétique homogène d'ordre 1 une droite dont la pente est égale à $-\frac{E}{R}$ et l'ordonnée à l'origine est égale à $\ln k_0$.

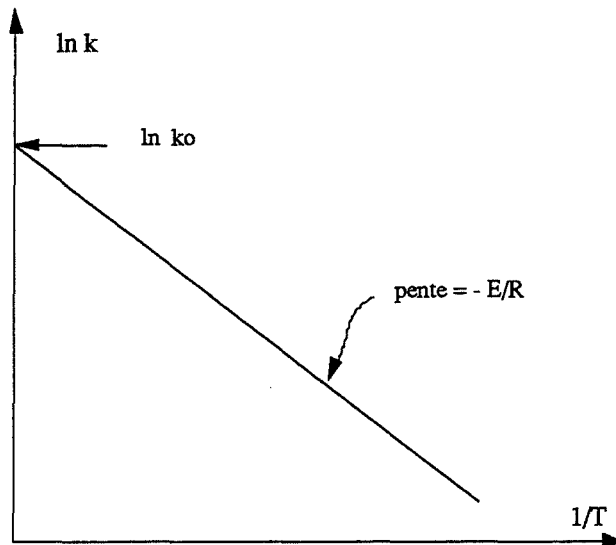


Figure II.38. Détermination de E et de k_0

II.2.3.2.2. Expériences

Nous avons effectué les mesures de la perte de la masse comme les mesures de C_p sur le thermoanalyseur TG-DSC 111 de SETARAM™. Les échantillons utilisés ont été séchés jusqu'à l'état anhydre en étuve et conservés en dessiccateur avant la manipulation. Les échantillons sont ensuite placés dans un creuset en quartz, suspendu à la microbalance. Le palier isotherme est précédé d'une rapide montée en température ($30^\circ \text{C}/\text{mn}$). Pendant cette montée, il y a une légère perte de masse, que nous avons retranchée par la suite dans nos calculs en prenant $t = 0$ au début de l'isotherme et $m_0 = m_{\text{début isotherme}}$. Pour tous les essais, la durée de l'isotherme est 30 mn et l'essai se fait sous balayage d'azote.

II.2.3.2.3. Résultats

La durée de l'isotherme de 30 min n'était pas suffisante pour que la réaction fût complète et que toute la masse pouvant réagir eût réagi. Nous avons donc remplacé M_∞ par M_f , la masse mesurée à la fin de la réaction. En observant la définition de α , on voit que $1-\alpha$ va varier entre 1 et 0, la valeur nulle étant obtenue pour la durée totale de l'isotherme. Donc $\ln(1-\alpha)$ va tendre vers $-\infty$ quand t approche 30 mn. Pour déterminer la pente k , on peut donc seulement utiliser le début du graphe. Seule les 1000 premières secondes ont été retenues pour la détermination de k par corrélation linéaire. Les pertes de masse isothermes pour le peuplier et le pin sont illustrées par les figures II.39 et II.40.

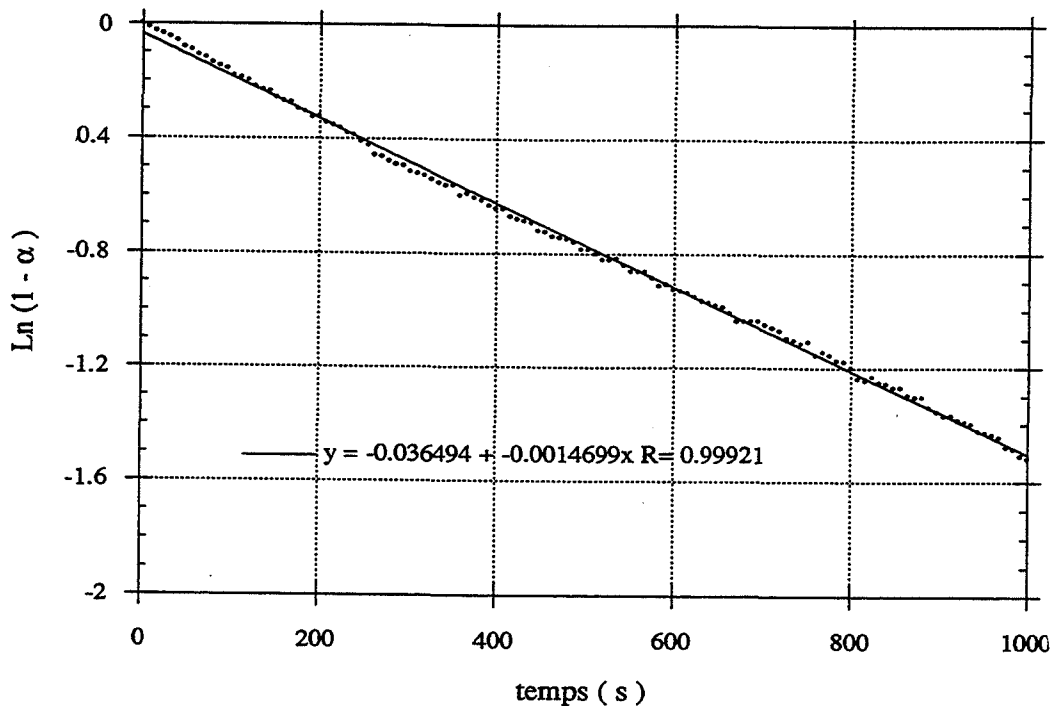


Figure II.41. Exemple de détermination de k - peuplier 260°C

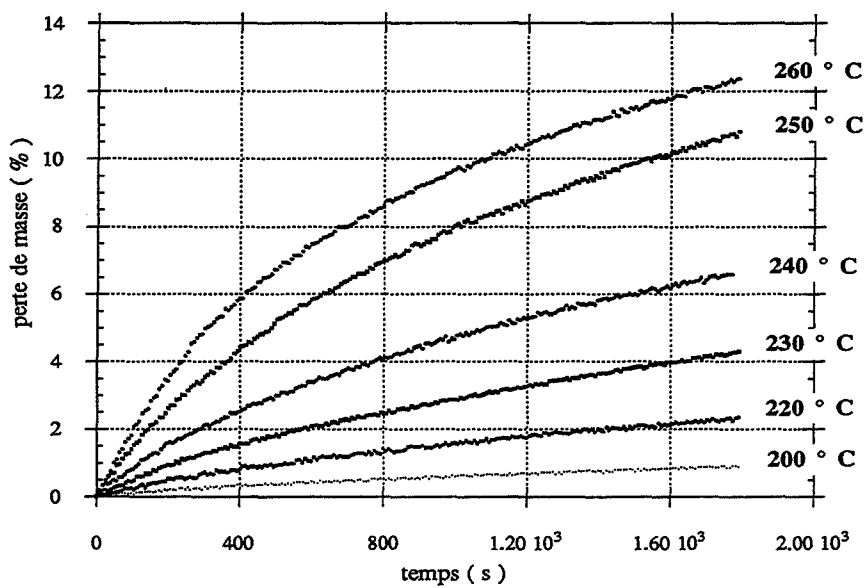


Figure II.39. Pertes de masse isothermes du peuplier .

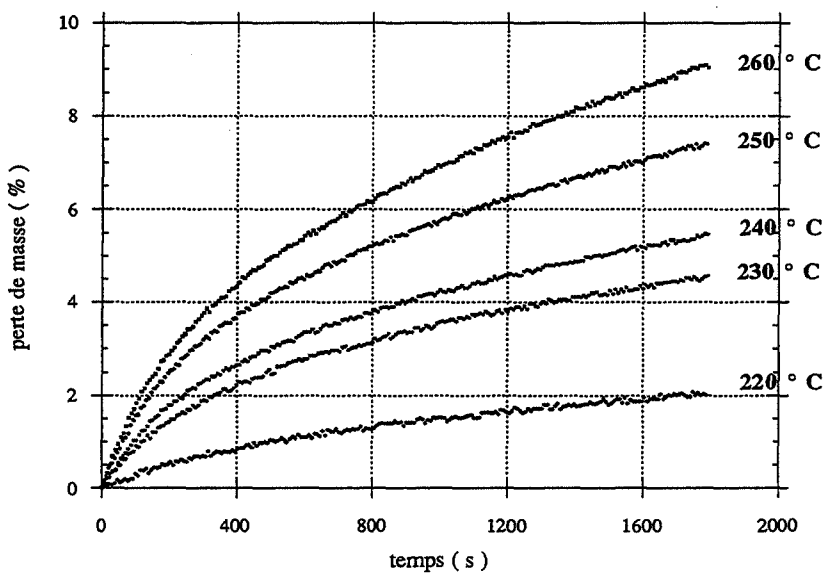


Figure II.40. Pertes de masse isothermes du pin.

Les tracés de $\ln(1 - \alpha)$ en fonction du temps donnent des droites pour les températures $> 200^\circ\text{C}$ avec des coefficients de régression linéaire supérieurs à 0,99, ce qui confirmerait l'hypothèse d'une cinétique homogène d'ordre 1. La figure II.41 montre un exemple de détermination de k pour l'isotherme de peuplier de 260°C .

Le tableau II.14 résume nos résultats.

T (°C)		200	220	230	240	250	260
peuplier	m_0 (mg)	14,4	16,5	14,2	13,0	8,5	11,0
	Δm_f (%)	0,9	2,4	4,3	6,6	10,8	12,4
	K (10^{-3}s^{-1})	1,070	1,087	1,097	1,190	1,289	1,470
pin	m_0 (mg)		14,4	11,2	13,0	12,7	10,5
	Δm_f (%)		2,0	4,6	5,5	7,4	9,0
	K (10^{-3}s^{-1})		1,422	1,464	1,367	1,383	1,318

Tableau II.13. Constantes de vitesse pour les différentes températures d'isotherme

Si l'on trace le diagramme d'Arrhénius ($\ln(K), T^{-1}$) (fig.II.41), les résultats sont surprenants, surtout en ce qui concerne le pin, car l'énergie d'activation apparente est négative. Il est alors évident que la cinétique de réaction n'est pas simple et qu'il y a compétition entre plusieurs réactions. L'énergie d'activation apparente peut s'écrire $E_a = E + \sum \Delta H_i$. Ainsi, dans le cas du pin, la somme des enthalpies des réactions serait négative et supérieure à l'énergie réelle d'activation. Quant à la cinétique relative au peuplier, elle présente un changement de pente à 230°C .

Lorsqu'on consulte le tableau II.2 (p 44), on s'aperçoit que dans le domaine de températures considérées, la principale différence entre feuillus et résineux provient de la décomposition des hémicelluloses: la décomposition d'une hémicellulose de feuillu (xylane) serait exothermique (-38 kJ/kg) tandis que la décomposition d'une hémicellulose de résineux (glucomannane) serait endothermique (43 kJ/kg). Bien sûr, il serait nécessaire de vérifier plus précisément cette hypothèse par une analyse thermique plus poussée, mais cette explication est pour l'instant cohérente avec les résultats bibliographiques concernant les enthalpies de réactions.

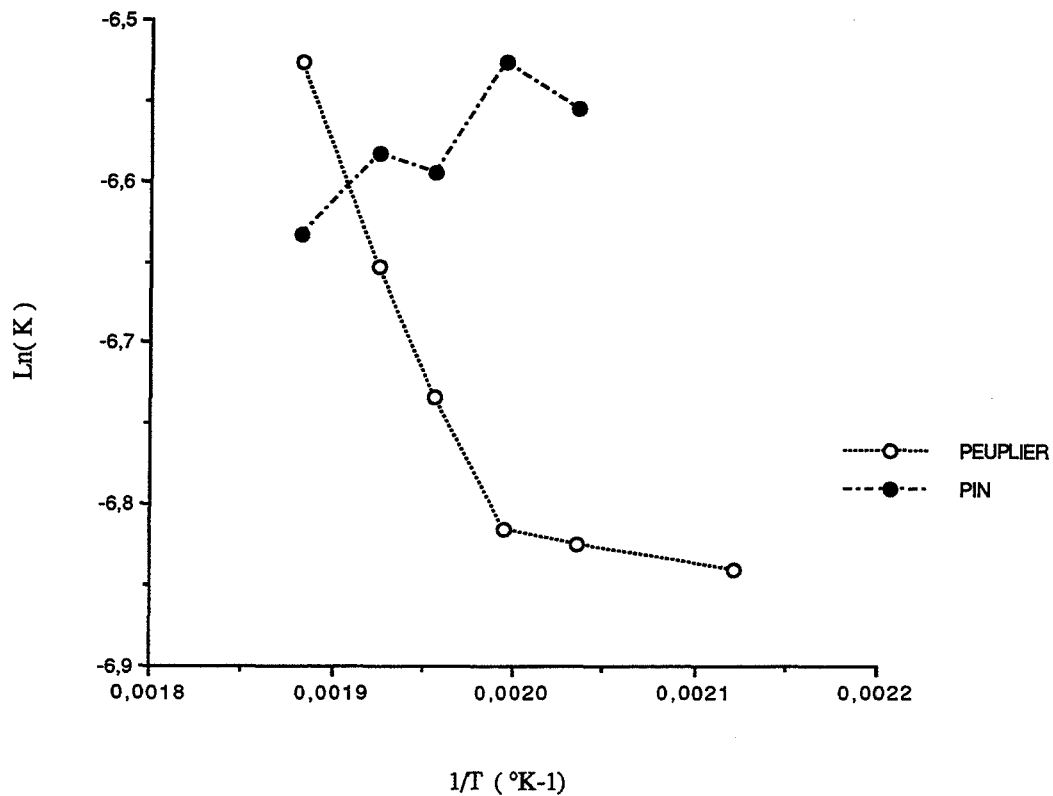


Figure II.41. Diagrammes d'Arrhénius

II.2.3.3. Enthalpie de pyrolyse

Les mesures en DSC du flux de chaleur par différence entre les essais isothermes déjà décrits et le blanc correspondant n'ont pas pu mettre en évidence de thermicité de réactions. Comme il semble que les réactions exothermiques soient surtout des réactions secondaires des gaz de pyrolyse, il est logique qu'en creuset ouvert, on ne les mette pas en évidence. D'autre part, comme il apparaît que même entre massif et copeaux, le comportement en pyrolyse est très différent, la mesure de l'enthalpie de pyrolyse par un thermo-analyseur travaillant sur de très petites quantités est d'utilité limitée, car elle ne correspond pas à la réalité des conditions opératoires. A notre avis, cette mesure aurait due être effectuée sur de gros échantillons de massif dans un calorimètre.

II.2.4. Conclusions de l'étude expérimentale

Nous retiendrons de nos essais les conclusions suivantes:

Lors de la pyrolyse isotherme de cylindres de bois à des températures comprises entre 200°C et 260°C, les facteurs qui ont la plus grande influence sur l'évolution temporelle des gradients de températures sont:

- * la température du bain
- * le rayon du cylindre

montrant ainsi que le phénomène prépondérant est la conduction.

Pour tous les échantillons, il a été mis en évidence que, quel que soit le rayon considéré, les profils de température atteignaient la température de consigne en même temps. Au-delà de ce temps, la température dépasse la température du bain, et la composante radiale du gradient de température s'inverse.

Le dépassement de la température de consigne est caractéristique d'un processus chimique globalement exothermique, dont l'enthalpie augmente avec le taux d'humidité initial et le diamètre du cylindre. Elle est plus marquée pour le feuillu que pour le résineux. Par contre, la mesure des flux de chaleur en DSC ne met pas en évidence ce phénomène. Conformément à la bibliographie, ces observations suggèrent que l'exothermicité est la conséquence de réactions secondaires.

Nous avons proposé des paramètres cinétiques représentatifs d'une réaction pseudo-homogène d'ordre un à partir de mesures sur des échantillons massifs traités en bain. L'étude par thermogravimétrie isotherme sur des copeaux n'a pas permis de corroborer ces résultats et a souligné la complexité des réactions en jeu, illustrée pour le pin par une énergie d'activation apparente négative.

II.3. MODELISATION

En parallèle avec l'étude expérimentale, nous avons cherché à mettre au point un modèle mathématique décrivant le procédé afin de disposer d'un outil de prédiction qui nous aide à la fois pour la compréhension des phénomènes et le choix des paramètres optimaux.

Le modèle que nous avons choisi de développer est un système de trois équations, basé sur trois bilans:

- énergie
- masse totale
- masse d'eau

afin de calculer les trois inconnues de notre problème :

- champ de température
- champ de densité
- champ d'humidité .

II.3.1. Hypothèses de modélisation

Nous avons choisi de ne considérer dans un premier temps qu'un échantillon de symétrie cylindrique (fig.II.42).

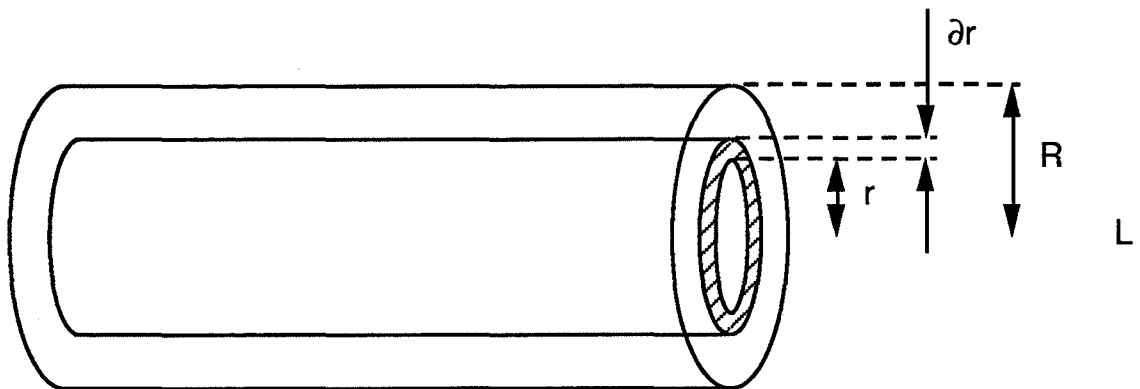


Figure II.42. Schéma de la géométrie de modélisation

Comme vérifié dans le paragraphe II.2.1.2.1, on peut considérer que loin des bords, la température est indépendante de la position sur l'axe. La symétrie cylindrique amène à ne considérer qu'une dimension d'espace: le rayon r . La modélisation va donc se faire sur deux variables, le temps t et le rayon r .

Pour simplifier notre problème, nous avons décidé de négliger l'influence de la phase gazeuse en considérant que, comme la perméabilité était plus élevée dans la direction longitudinale, les gaz

s'échappaient principalement selon celle-ci. Cependant, comme le rapport des dimensions transversales sur la dimension longitudinale est faible, on peut penser qu'au début tout du moins, il existera un terme de convection gazeuse dans la direction radiale due à la vapeur d'eau générée par les processus de séchage, mais nous avons choisi dans cette première étape de mise en équations de ne pas le prendre en compte. De même, nous avons fait comme hypothèse que le gradient de pression était nul. Par conséquent, nous négligeons complètement la contribution de la phase gazeuse dans les équations. D'autre part, nous avons également négligé la variation de volume du cylindre (qui, d'après les résultats expérimentaux, s'élève au maximum à 20 %) et simplifié au maximum la description des transports d'eau.

Au vu des courbes expérimentales et des modèles développés en II.1.8, en particulier celui d'Alves et Figueiredo (1989), nous avons opté pour la décomposition du processus en plusieurs zones de températures:

- en dessous de 100° C: conduction de la chaleur - diffusion de l'eau liquide
- à 100 ° C: vaporisation de l'eau liquide contenue dans le bois
- entre 100 ° C et 180° C: conduction seule
- à partir de 180° C: conduction - réaction exothermique.

II.3.2. Mise en équations

II.3.2.1. Bilan d'énergie

Le bilan d'énergie comprend un terme d'accumulation, un terme de conduction qui obéit à la loi de Fourier, un terme qui décrit la vaporisation de l'eau et un terme qui exprime la réaction de pyrolyse du bois.

En coordonnées cylindriques, notre bilan s'écrit :

$$\rho_{\text{tot}} C_{p \text{ tot}} \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \left\{ \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right\} + \Delta H_H \rho_{\text{an0}} \frac{\partial X}{\partial t} + \Delta H_{\text{pyro}} \frac{\partial \rho_{\text{an}}}{\partial t} \quad (1)$$

$$\text{avec} \quad C_{p \text{ tot}} = \frac{X C_{ph} + C_{pb}}{1 + X} \quad (.2)$$

C_p est fonction de l'humidité jusqu'au point : $X = 0$. Quand toute l'eau est évaporée, C_p se réduit juste au C_p du bois.

Dans l'équation (1), le terme de vaporisation va jouer seulement à partir de $T > 100$ °C jusqu'au moment où $X = 0$, et le terme de pyrolyse seulement à partir de $T = T$ début de réaction arbitrairement choisie égale à 180° C.

Nous avons exprimé λ par une loi des mélanges en supposant $\lambda_{\text{eau/bois}}$ constant:

$$\lambda = \lambda_{\text{eau/bois}} \cdot X + \lambda_{\text{bois}} \quad (3)$$

A partir de 100°C, le phénomène prépondérant est la vaporisation d'eau, λ va donc dépendre essentiellement de $\lambda_{\text{vap.eau}}$ jusqu'à ce que toute la vapeur d'eau soit évacuée du bois. Pendant cette période, on suppose λ constant et on l'approche par $\lambda_{\text{vap.eau}} = 0,024 \text{ W/m}^\circ\text{K}$ à 100°C. Après, la conductivité se réduit à la conductivité du bois seul.

Il nous reste maintenant à exprimer la densité et l'humidité.

II.3.2.2. Bilan de masse

La densité se compose de deux termes : un terme qui prend en compte la participation de l'eau et un autre qui exprime la densité de la matière ligno-cellulosique elle-même :

$$\rho_{\text{tot}} = \rho_{\text{an0}} X + \rho_{\text{an}} \quad (4)$$

De même, la dérivée partielle par rapport au temps de la densité se compose de deux termes :

$$a) \quad \frac{\partial \rho_{\text{tot}}}{\partial t} = \rho_{\text{an0}} \frac{\partial X}{\partial t} \quad (5)$$

jusqu'à $X = 0$ et $T < T_{\text{début de réaction}} = 180^\circ\text{C}$ et

$$b) \quad \frac{\partial \rho_{\text{tot}}}{\partial t} = \frac{\partial \rho_{\text{an}}}{\partial t} \quad (6)$$

qui exprime la diminution de matière du bois anhydre. Ce terme est nul avant que la réaction ait débutée. Après, il suit une loi d'Arrhénius avec une cinétique du premier ordre :

$$\frac{\partial \rho_{\text{an}}}{\partial t} = -k_0 \exp\left(\frac{-E}{R T}\right) (\rho_{\text{an}} - \rho_f) \quad (7)$$

II.3.2.3. Bilan sur l'humidité

Pour le bilan sur la masse d'eau, on a considéré deux étapes distinctes :

a) avant la vaporisation où la variation de X est gouvernée par une loi de Fick de diffusion, soit en coordonnées cylindriques :

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \text{Dif} \left\{ \frac{\partial X^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial X}{\partial r} \right\} \quad (8)$$

En s'appuyant sur le travail de Droin-Josserand (1988), ce coefficient augmente avec la température selon une relation d'Arrhénius :

$$\text{Dif} = D_0 \exp\left(\frac{-E_D}{R T}\right) \quad (9)$$

Nous avons négligé la dépendance de ce coefficient avec le taux d'humidité.

- b) A partir de 100°C, la variation de X est dominée par la vaporisation. La dérivée par rapport au temps de la température $\frac{\partial T}{\partial t}$ est nulle. Cela nous permet d'écrire d'après le bilan d'énergie :

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{-\lambda}{\Delta H_H \rho_{an0}} \left\{ \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right\} \quad (10)$$

II.3.3. Résolution numérique

La résolution numérique du système d'équations posé dans le paragraphe précédent se heurte à quelques problèmes de discrétisation, car celui-ci comprend des termes non linéaires de diffusion et de réaction. Deux méthodes de résolution numérique ont été développées: la méthode des différences finies, mais qui nous a posé de sérieux problèmes de convergence, et la méthode implicite de Crank-Nicholson, plus stable numériquement.

II.3.3.1. Différences finies (méthode explicite)

Cette méthode est dite explicite dans la mesure où, après calculs, le système d'équations aux dérivées partielles nous donne une expression explicite de la température, de l'humidité et de la densité à l'instant j+1 en fonction des grandeurs à l'instant j.

On remplace donc les dérivées partielles par rapport au temps et au rayon par une discrétisation en temps et en espace:

$$\left\{ \frac{\partial T}{\partial t} \right\}_{i,j} = \frac{T_{i,j+1} - T_{i,j}}{k_t} \quad (\text{différence en avance}) \quad (11)$$

$$\left\{ \frac{\partial T}{\partial r} \right\}_{i,j} = \frac{T_{i+1,j} - T_{i,j}}{h_r} \quad (\text{différence en avance}) \quad (12)$$

$$\left\{ \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right\}_{i,j} = \frac{T_{i+1,j} - 2T_{i,j} + T_{i-1,j}}{h_r^2} \quad (\text{différence centrée}) \quad (13)$$

pour la température. Les expressions sont identiques pour l'humidité et la densité.

Les formes discrétisées sont introduites dans les équations (1), (5), (7), (8) et (10) et on obtient donc :

pour la température :

$$T_{i,j+1} = \frac{\lambda k_t}{i h_r^2 \rho_{tot i,j}} \frac{1 + X_{i,j}}{X_{i,j} C_{ph} + C_{pb}} \left\{ (i + 1) T_{i+1,j} - (2i + 1)T_{i,j} + iT_{i-1,j} \right\} + \frac{\Delta H_{pyro}}{\rho_{tot i,j}} \frac{1 + X_{i,j}}{X_{i,j} C_{ph} + C_{pb}} \left\{ \rho_{tot i,j+1} - \rho_{tot i,j} \right\} + T_{i,j} \quad (14)$$

pour la densité :

a) jusqu'à $X = 0$ et $T < T_{\text{début de réaction}} = 180^\circ\text{C}$

$$\rho_{tot i,j+1} = \rho_{an0} \left\{ X_{i,j+1} - X_{i,j} \right\} + \rho_{tot i,j} \quad (15)$$

b) à partir de $T > T_{\text{début de réaction}} = 180^\circ\text{C}$

$$\rho_{tot i,j+1} = - k_0 k_t \exp \left(\frac{-E}{R T_{i,j}} \right) \left\{ \rho_{tot i,j} - \rho_f \right\} + \rho_{tot i,j} \quad (16)$$

pour l'humidité :

a) avant 100°C , X suit la deuxième loi de Fick de diffusion

$$X_{i,j+1} = \frac{D_0 k_t}{i h_r^2} \exp \left(\frac{-E_D}{R T_{i,j}} \right) \left\{ (i + 1) X_{i+1,j} - (2i + 1)X_{i,j} + i X_{i-1,j} \right\} + X_{i,j} \quad (17)$$

b) à partir de 100 °C

$$X_{i,j+1} = \frac{-\lambda k_t}{\Delta H_H \rho_{an0} i h_r^2} \left\{ (i + 1) T_{i+1,j} - (2i + 1)T_{i,j} + i T_{i-1,j} \right\} + X_{i,j} \quad (18)$$

On peut donc calculer le taux d'humidité $X_{j+1,i}$ à partir des taux précédemment calculés ou à partir des températures déjà connues si on a dépassé 100° C. Avec le nouveau taux d'humidité calculé au temps $j+1$, il est alors possible de calculer la densité jusqu'au moment où on change d'équation pour calculer la densité à partir de 180° C. A ce moment, la densité est calculée par une densité déjà calculée au temps j . Finalement , on calcule la température $T_{j+1,i}$ sur la base des calculs précédents pour l'humidité, la densité et les anciennes températures. On fait varier l'indice en espace entre $i = 0$ qui représente le centre et $i = N$, qui représente la surface. L'indice en temps j varie entre 0 et la durée totale de traitement.

Il nous reste à introduire les conditions aux limites et les conditions initiales

$i = 0$:

Les équations (14) jusqu'à (18) pour l'humidité et la température ne sont plus valables pour $i = 0$.

Pendant, il est correct de dire, vu la symétrie du problème :

$$\frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad ; \quad \frac{\partial X}{\partial r} = 0 \quad ; \quad \frac{\partial \rho}{\partial r} = 0$$

On obtient alors à partir de l'équation (1) pour la température l'équation suivante :

$$\rho_{tot} C_{p tot} \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \Delta H_{pyro} \frac{\partial \rho_{an}}{\partial t} \quad (19)$$

et sous forme de différences finies :

$$T_{0,j+1} = \frac{\lambda k_t}{h_r^2 \rho_{tot 0,j}} \frac{1 + X_{0,j}}{X_{0,j} C_{ph} + C_{pb}} \left\{ T_{1,j} - T_{0,j} \right\}$$

$$+ \frac{\Delta H_{\text{pyro}}}{\rho_{\text{tot } 0,j}} \frac{1 + X_{0,j}}{X_{0,j} C_{\text{ph}} + C_{\text{pb}}} \{ \rho_{\text{tot } 0,j+1} - \rho_{\text{tot } 0,j} \} + T_{0,j} \quad (20)$$

Pour l'humidité, on a :

a) X par la deuxième loi de Fick de diffusion (8) jusqu'à 100 °C

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \text{Dif} \frac{\partial^2 X}{\partial r^2} \quad (21)$$

b) au-dessus de 100°C (10)

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{-\lambda}{\Delta H_{\text{H}} \rho_{\text{an}0}} \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \quad (22)$$

Finalement, (21) devient :

$$X_{0,j+1} = \frac{D_0 kt}{h_r^2} \exp\left(\frac{-E_D}{R T_{0,j}}\right) \{ X_{1,j} - X_{0,j} \} + X_{0,j} \quad (23)$$

et (22) devient :

$$X_{0,j+1} = \frac{-\lambda k_t}{\Delta H_{\text{H}} \rho_{\text{an}0} h_r^2} \{ T_{1,j} - T_{0,j} \} + X_{0,j} \quad (24)$$

i = N :

Pour l'instant, on conserve comme condition à la surface que la température T_N est constante et égale à la température du four T_C . Cependant, on a envisagé de remplacer cette hypothèse trop simplificatrice par :

$$h_w (T_C - T_N) = \lambda \frac{\partial T_N}{\partial r} \quad (25)$$

En attendant de fournir des valeurs convenables pour h_w , l'équation (25) peut être introduite dans le logiciel sous la forme :

$$T_{N,j+1} = \frac{\lambda T_{N-1,j+1} + h_w h_r T_c}{\lambda + h_w h_r} \quad (26)$$

Il faudrait procéder de la même façon pour le taux d'humidité à la surface. On a supposé pour le moment que le transport de matière n'était pas limité et qu'à la surface $X=0$ (pour $i = N$).

En ce qui concerne les conditions initiales pour le taux d'humidité, la densité et la température, on introduit les valeurs initiales X_0 , T_0 et $\rho_{tot 0}$ pour $j = 0$.

Cette méthode n'a pas posé de problème pour l'écriture des algorithmes, mais au niveau de la convergence du système d'équations. En effet, dans le cas classique d'un régime transitoire gouverné par de la conduction seule, le critère de convergence s'écrit (Smith, 1985):

$$\frac{a \Delta t}{(\Delta r)^2} < \frac{1}{2}$$

où a est la diffusivité thermique (cf annexe II).

Cependant, notre système est beaucoup plus complexe, du fait du nombre élevé de paramètres et du couplage entre les trois champs calculés et il s'avère impossible d'écrire explicitement un critère fonction des paramètres et des pas d'espace et de temps en fonction duquel il aurait été possible d'adapter les pas.

II.3.3.2. Méthode de Crank-Nicholson (méthode implicite)

Par cette méthode, les dérivées spatiales sont exprimées en faisant intervenir une demi-somme. Ce procédé améliore la précision. D'autre part, la dérivée temporelle n'est plus exprimée par une différence en avance ou en retard, mais par une différence centrée, ce qui améliore la stabilité.

Les équations différentielles sont discrétisées en les exprimant non plus en (r_i, t_j) mais en $(r_i, t_{j+1/2})$. On écrit alors :

$$\left\{ \frac{\partial T}{\partial t} \right\}_{i,j+1/2} = \frac{T_{i,j+1} - T_{i,j}}{k_t} \quad (\text{différence centrée}) \quad (11)$$

$$\left\{ \frac{\partial T}{\partial r} \right\}_{i,j+1/2} = \frac{T_{i+1,j} - T_{i,j}}{h_r} + \frac{T_{i+1,j+1} - T_{i,j+1}}{h_r} \quad (\text{différence en avance}) \quad (12)$$

$$\left\{ \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right\}_{i,j+1/2} = \frac{1}{2} \left(\frac{T_{i+1,j} - 2T_{i,j} + T_{i-1,j}}{h_r^2} + \frac{T_{i+1,j+1} - 2T_{i,j+1} + T_{i-1,j+1}}{h_r^2} \right) \quad (\text{différence centrée}) \quad (13)$$

Après calculs, on ne peut obtenir d'expression explicite de $T_{i,j+1}$, $X_{i,j+1}$ et $r_{i,j+1}$. On aboutit à une expression matricielle:

$$A \cdot (T_{1,j+1} \dots T_{i,j+1} \dots T_{N,j+1} \ X_{1,j+1} \dots X_{N,j+1} \ \rho_{1,j+1} \dots \rho_{N,j+1}) = K$$

où K est une matrice colonne et A une matrice carrée dont les coefficients sont connus puisqu'ils ne dépendent que des instants antérieurs. On parle ainsi de méthode implicite de calcul. Pour écrire le système linéaire, nous avons été obligé de faire l'approximation suivante de l'égalité des termes exponentiels aux temps $j + \frac{1}{2}$ et j et l'expression $k_0 \exp(\frac{-E}{2R(T_{i,j} + T_{i,j+1})})$ devient

$$k_0 \exp(\frac{-E}{R T_{i,j}})$$

La méthode est beaucoup plus stable et plus précise, mais du fait de l'écriture matricielle, elle pose quelques problèmes au raccordement des différentes zones de températures, car les bornes de ces zones se décalent progressivement vers le centre.

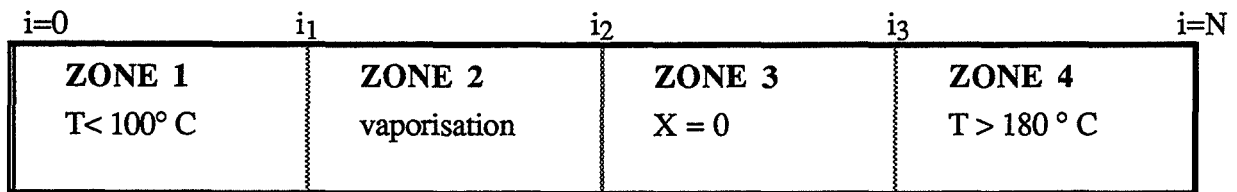


Fig.II.43. Définition des bornes des différentes zones du modèle

Les bornes sont calculées par l'algorithme suivant:

calcul des bornes à l'instant j

$i:=N-1$

Tant que $T(i) > 180^\circ C$ et $i \neq 0$ alors $i:=i - 1$

$i_3:=i$

$i:=i_3$

Tant que $X(i) = 0$ et $i \neq 0$ alors $i:= i-1$

$i_2:=i$

$i:=i_2$

Tant que $T(i) > 100^\circ C$ et $i \neq 0$ alors $i:= i-1$

$i_1:=i$

Après calculs sur lesquels nous passons, le système se met sous la forme suivante:

$$A X_{j+1} = K$$

$$B X_{j+1} + r_{ohj+1} = Q$$

$$C X_{j+1} + r_{ohj+1} + D T_{j+1} = P$$

où A , B , C et D sont des matrices $N*N$ et P , Q et K des matrices colonnes dont les coefficients ne dépendent que des instants antérieurs à $j+1$. Les matrices A , B , C et D sont

tridiagonales, et par conséquent il est inutile de les inverser pour résoudre le système. Par une procédure inspirée de la méthode du pivot de Gauss, on calcule successivement X_{j+1} , $\rho_{h,j+1}$ et T_{j+1} . Dans le cas limite $i=0$, on pose, vu la symétrie du problème, que les dérivées par rapport à r sont nulles et que $\left\{ \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right\}_{0,j} = 2 \frac{T_{1,j} - T_{0,j}}{hr^2}$

II.3.4. Résultats

Les deux programmes sont donnés en annexe III. Ils ont été écrits en TurboPascal 5 sur un ordinateur IBM:PS2 standard 386. La structure globale est commune aux deux méthodes développées: elle comprend deux procédures de base, la première se charge d'assembler les données, de les modifier et de les enregistrer. La seconde calcule successivement les champs d'humidité, de densité et de température. Les fichiers de résultats peuvent ensuite être traités par un logiciel de tracé qui peut donner à la fois les courbes d'humidité, de densité et de température en fonction du temps et du rayon.

II.3.4.1. Influence des paramètres

Les données nécessaires à l'exécution du programme sont les suivantes:

* *la valeur des pas en espace et en temps*

pas en temps kt (s)

pas en espace hr (mm)

* *les conditions aux limites en espace et en temps*

diamètre du bois X (mm)

temps de traitement Y (mn)

température du four T_c ($^{\circ}C$)

densité finale ρ_{hf} (kg/m^3)

NB: Cette donnée est nécessaire vu la formulation de l'expression cinétique retenue. Cependant, elle limite l'utilité prédictive du programme puisqu'il faut connaître à priori la perte de densité pour déterminer les différents champs. Cet inconvénient pourrait être éliminé en développant des expressions cinétiques plus complexes, par exemple en deux étapes. Mais n'oublions pas que tout degré supplémentaire de complexité ajoute des difficultés pour la stabilité du système et l'optimisation des paramètres, surtout quand il apparaît difficile expérimentalement de les déterminer (cf II.2.3.2).

* *les conditions initiales*

température initiale T_{in} ($^{\circ}C$)

densité totale initiale ρ_{htot0} (kg/m^3)

densité anhydre rohan0 (kg/m³)
humidité initiale X₀

** les paramètres des équations*

conductivité lambda bois λ_b(W/m.K)
capacité calorifique bois C_{pb} (J/kg.K)
enthalpie de pyrolyse ΔH_p J/kg)
énergie d'activation E (J/mol)
constante de temps k₀ (s⁻¹)
coefficient de diffusion dif₀ (m²/s)
énergie d'activation diffusion E₀

On voit donc que pour le système non adimensionné, il faut déterminer 7 paramètres. Il est possible que l'adimensionnement des équations en supprime un ou deux, mais il reste au moins cinq paramètres à ajuster. La seule valeur dont nous soyons sûrs au niveau de la mesure expérimentale est la capacité calorifique. A partir des résultats de DSC, nous l'avons prise égale à 1,1 J/g.K. Malheureusement, nos essais de thermogravimétrie n'ont pas permis de lever l'ambiguïté sur les valeurs des paramètres cinétiques. La valeur de λ est également mal définie puisqu'elle peut varier suivant la densité et le sens du flux de chaleur. Nous pouvons considérer qu'elle est comprise entre 0,036 et 0,16 W/m.K pour une densité de 500 kg/m³ (cf I.5.3.3). Des mesures effectuées par Avat (1992) sur l'épicéa ont donné pour la conductivité radiale une valeur de 0,084 W/m.K.

D'autre part, nous introduisons également les constantes relatives à l'eau, soient sa capacité calorifique 1,84 J/g.K, son enthalpie de vaporisation 2392 J/kg et sa conductivité thermique lorsqu'elle est dans le bois. Or pour cette dernière valeur, nous avons peu de renseignements. Au vu des résultats de Charuel et de ceux d'Alves et Figueiredo (1989), nous l'avons prise égale à 0,2 W/m.K. Les valeurs des coefficients de diffusion radiale et de l'énergie d'activation correspondante pour l'eau liquide ont été tirées du travail de Droin-Josserand (1988), soient 2,83 m²/s et 59 kJ/mol.

Bien que notre idée de départ était d'optimiser les paramètres par une méthode de moindres carrées appliquée à la différence entre courbe expérimentale et courbe théorique obtenues pour les mêmes conditions, la grande dispersion sur les valeurs bibliographiques et expérimentales des paramètres (et les problèmes de stabilité!) nous ont fait procéder à tâtons dans un premier temps afin d'estimer la sensibilité du modèle à λ, E, k₀ et ΔH_p.

Nous avons fait varier λ entre 0,05 et 0,15 (fig.II.44), E entre 60 et 80 kJ/mol (en se référant aux résultats de II.2.2.1.1., l'énergie d'activation apparente de la réaction pour une cinétique globale d'ordre 1 appliquée au peuplier serait de cet ordre de grandeur, ce qui est confirmé par les

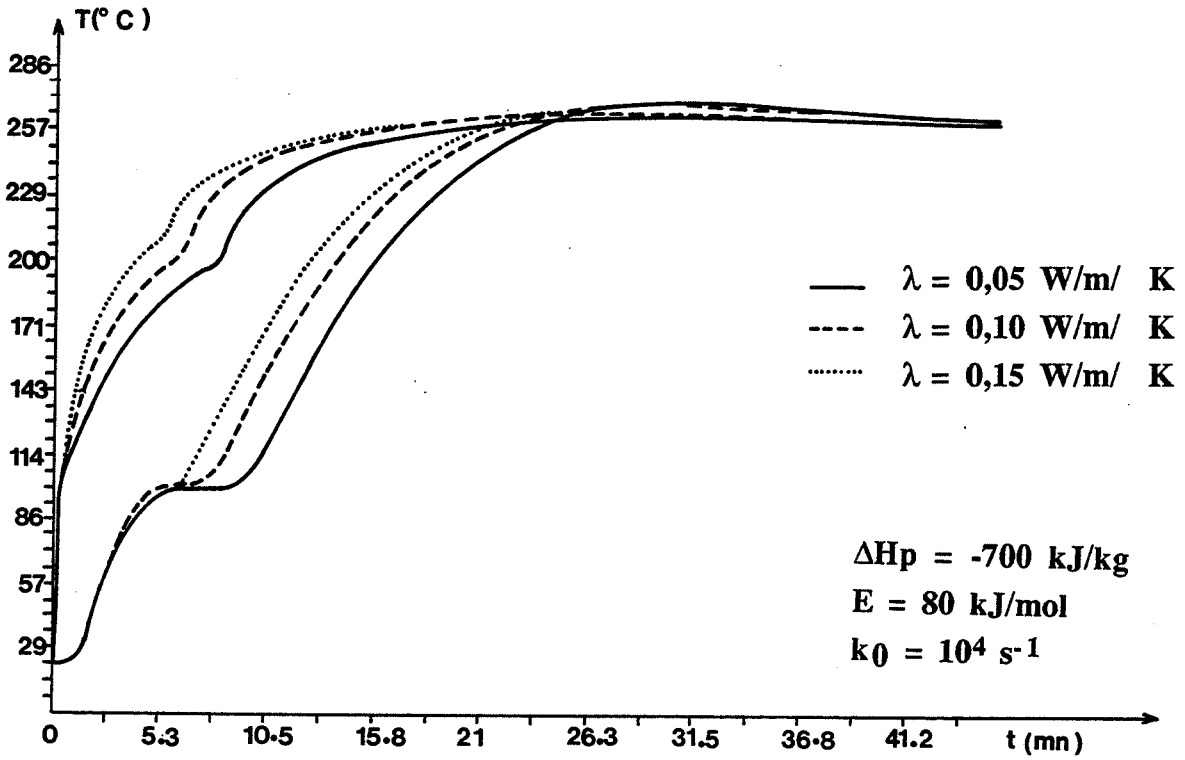


Figure II.44 Influence de la conductivité thermique

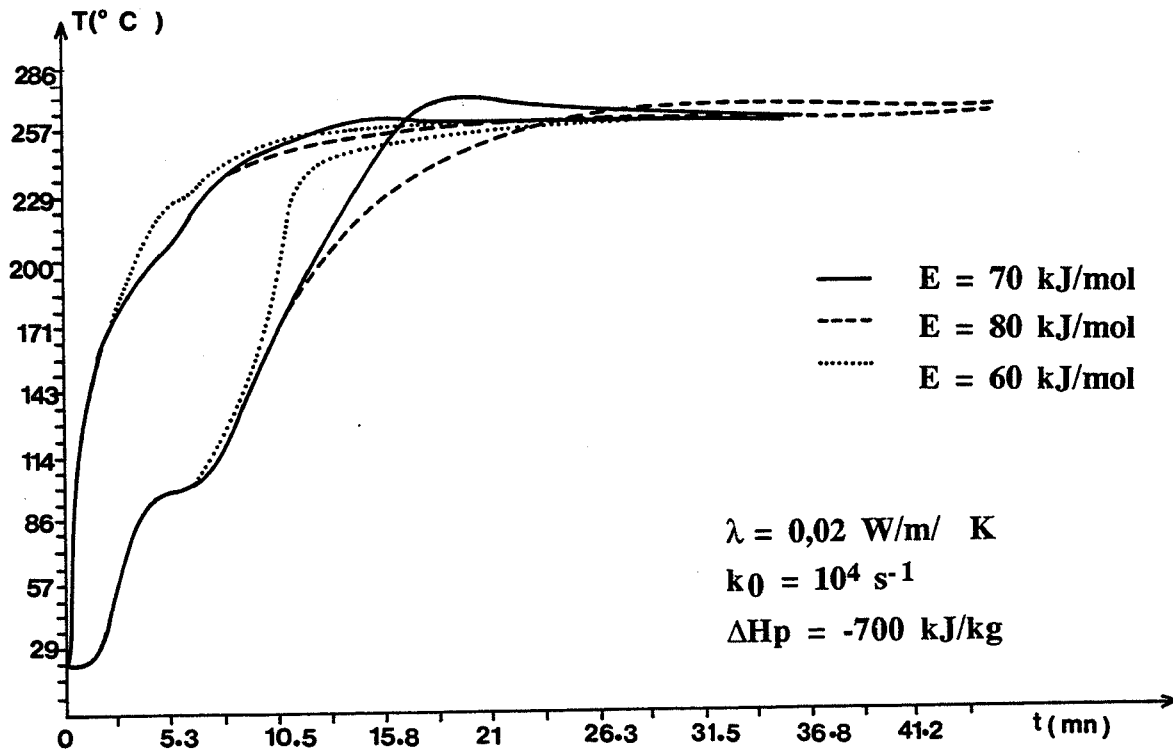


Figure II.45. Influence de l'énergie d'activation

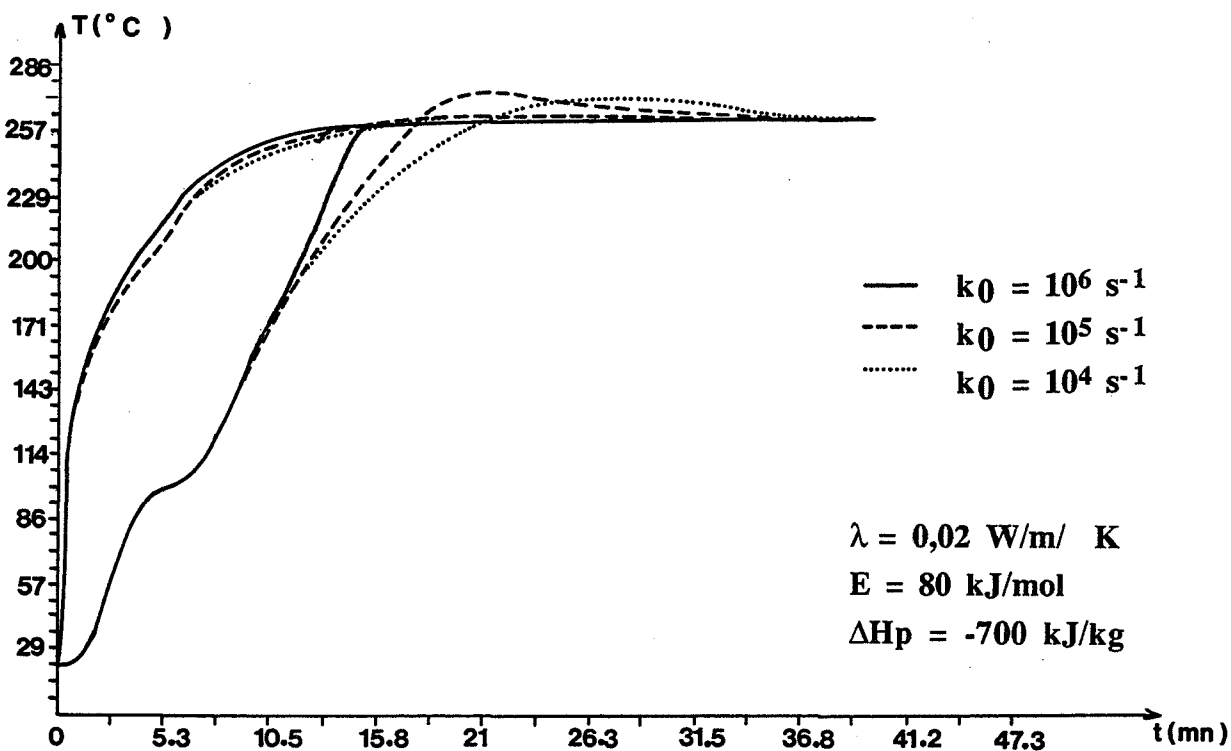


Figure II.46. Influence de la constante de temps

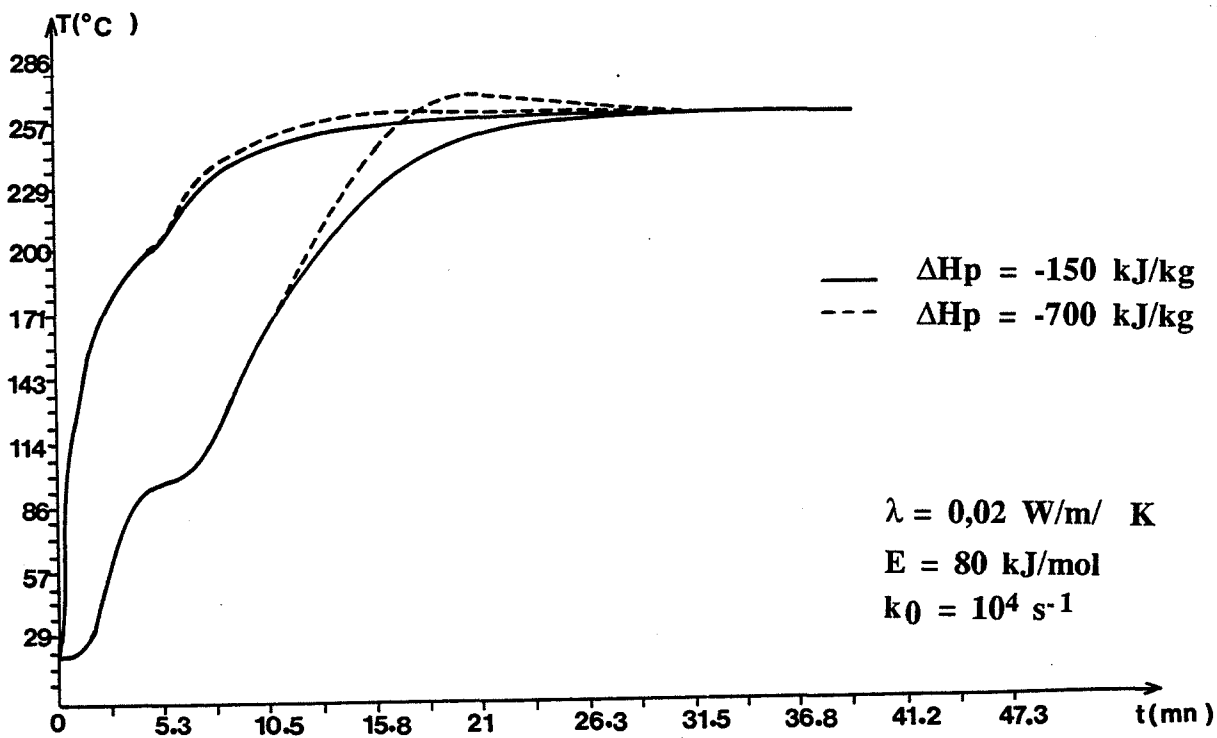


Figure II.47. Influence de l'enthalpie de pyrolyse

valeurs données par Vovelle et al.(1986) pour le peuplier, soient 76 kJ et $4,3 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ (fig.II.45), k_0 entre 10^6 et 10^4 s^{-1} (fig.II.46) et ΔH_p entre -150 kJ/kg et -700 kJ/kg (fig II.47). Bien que très simplificateur, notre modèle fournit des courbes simulées présentant la plupart des caractéristiques des courbes expérimentales, c'est-à-dire: un palier de vaporisation, une intersection commune à toutes les courbes et un dépassement de la température de consigne.

Le paramètre auquel le modèle est le plus sensible est la conductivité thermique. Pour le moment, la valeur qui adapte le mieux les courbes simulées aux courbes expérimentales est plus basse que celle déterminée expérimentalement (0,02 W/m.K), ce qui peut être du, soit à ce que nous avons négligé le transfert surfacique, soit que l'influence des termes de convection et de diffusion se traduit par une conductivité apparente plus faible. Les valeurs de E et de k_0 déterminées à partir d'une cinétique globale sur les barreaux de peuplier apparaissent tout à fait réalistes. Par contre, le manque total de données expérimentales sur ΔH_p ne permet pas de tirer de conclusion. Il apparaît cependant que la valeur approchant le mieux la réalité expérimentale est très élevée (-700 kJ/kg).

II.3.4.2. Comparaison modèle-expérience

Par tâtonnements, nous avons déterminé le jeu de paramètres s'accordant le mieux à la réalité expérimentale, soient:

$$C_{p\text{bois}} = 1,1 \text{ J/g.K}$$

$$\lambda_{\text{bois}} = 0,02 \text{ W/m.K}$$

$$E = 80 \text{ kJ/ mol}$$

$$k_0 = 3 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$$

$$\Delta H_p = -700 \text{ kJ/kg}$$

A partir de là, nous avons comparé les courbes expérimentales et les courbes modélisées pour un bois "sec" (fig.II.48) et un bois "humide" (fig.II.49). Nous avons également testé l'influence de l'introduction d'une condition limite de transfert surfacique (nous avons choisi comme valeur de h_w une valeur donnée par Havens et al.(1972) de $8,8 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$). Etant donné l'incertitude sur nos valeurs de paramètres expérimentaux, nous avons été assez surpris de la bonne concordance des résultats.

L'accord entre résultats numériques et courbes expérimentales est bien meilleur dans le cas du bois humide (100% d'humidité) que dans le cas du bois sec. Cependant, dans les deux cas, on peut noter une surestimation de la température proche de la surface tandis que la température au centre a tendance à être sous-estimée. Cette surestimation à la surface est particulièrement marquée dans le cas du bois sec. Jusqu'au début de la vaporisation, l'accord entre courbe expérimentale et courbe calculée est très bon pour la courbe de surface.

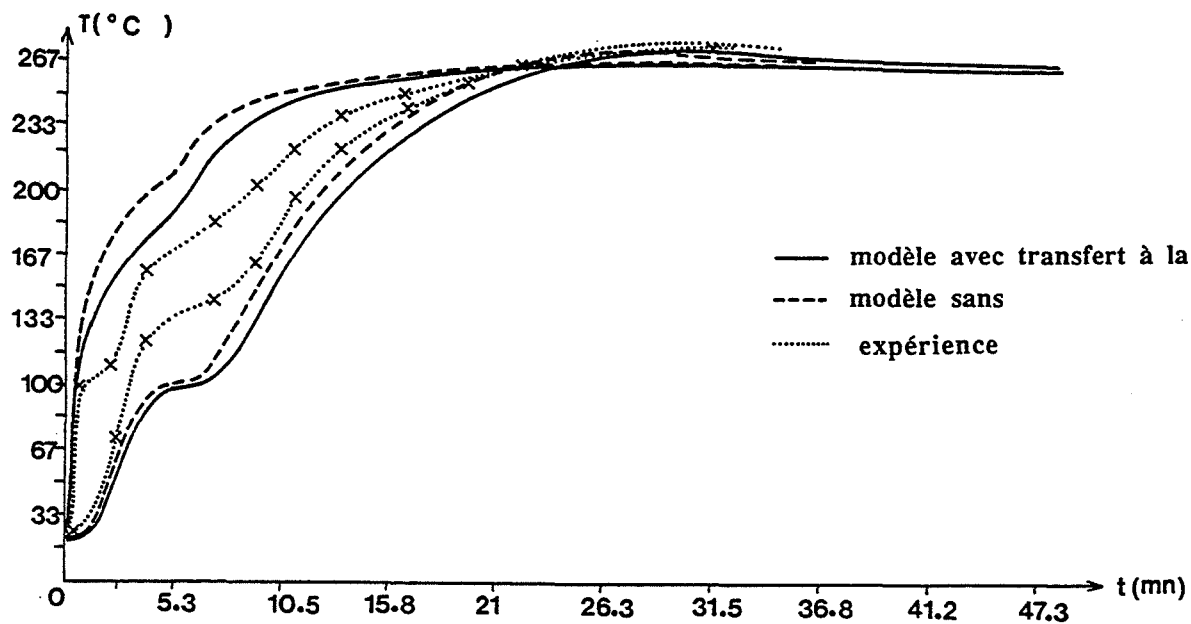


Figure II.48. Comparaison modélisation-expérience
 $T_c=260^{\circ}\text{C}$, \varnothing 32 mm, $X=6\%$

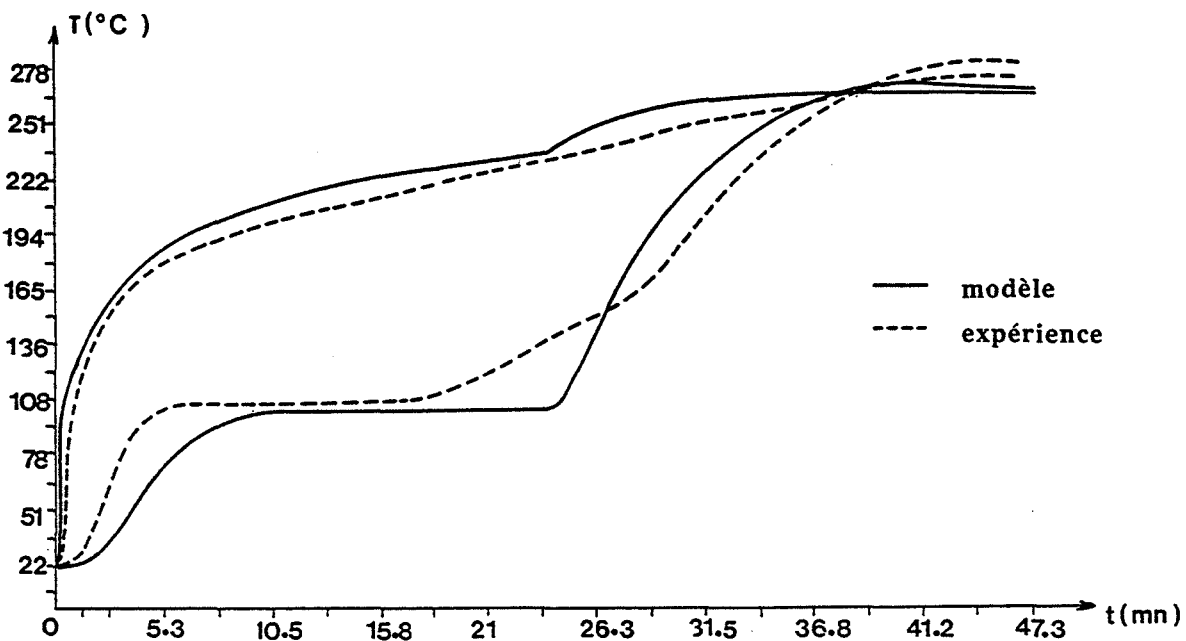


Figure II.49. Comparaison modélisation-expérience
 $T_c=260^{\circ}\text{C}$, \varnothing 32 mm, $X=110\%$

Par contre, le désaccord flagrant qui apparaît au-delà du petit palier du à l'humidité dans le cas du bois "sec" tient à l'extrême simplification des modes de transport de l'humidité dans notre modèle. Aux faibles taux, où l'eau restante est alors fortement adsorbée sur la matière ligno-cellulosique et ne peut plus être considérée comme une phase indépendante, température d'ébullition et enthalpie de vaporisation différent de celles de l'eau libre en équilibre avec la pression atmosphérique.

L'introduction d'une condition de transfert à la surface améliorerait le modèle pour l'estimation des températures de surface, mais sous-estimerait encore plus la température au centre. Il semble que la variation de λ avec l'humidité et par conséquent, le rayon, soit plus complexe que celle envisagée; de plus, il doit exister une différence entre les deux domaines hygroscopiques séparés par le PSF. Malgré tout, pour le bois humide, l'accord entre les deux courbes est très satisfaisant, compte-tenu de la relative simplicité du modèle comparée à la complexité du matériau.

Cependant, nous pouvons signaler que nous avons rencontré un problème au niveau de la définition et de la mesure du taux d'humidité. Les taux d'humidité introduits ont été calculés à partir de la formule:

$$\rho = \rho_{an0} \frac{1+X}{1 + \alpha_v X}$$

Dans ce calcul, on prend en compte le retrait volumique alors que nous l'avons négligé dans le modèle. Il serait logique à ce moment d' introduire α_v dans la dépendance de la densité par rapport à l'humidité.

La sous-estimation générale des températures dans les phases gouvernées par la conduction de chaleur doit sûrement être attribuée au fait que nous avons négligé la convection des gaz: vapeur d'eau surtout, et gaz de pyrolyse. La longueur du palier est bien modélisée, mais il est atteint plus rapidement dans la réalité. La conjugaison de l'imprécision sur les valeurs réelles des paramètres et de celles imputables aux méthodes de calcul numérique peut aussi être à l'origine de décalages.

De plus, la structure même de notre modèle nous fait quitter brusquement ce palier pour reprendre une loi de conduction. L'expérience nous montre au contraire qu'il existe une phase transitoire de montée en température entre la vaporisation et la reprise de la conduction, du fait de l'existence de deux régimes de vaporisation, eau libre, puis eau liée. Il est également impossible du fait même de la formulation du modèle de rendre compte des observations expérimentales concernant l'existence de zones plus froides où la vapeur d'eau se recondenserait ou des variations de l'enthalpie de réaction avec l'humidité ou le diamètre.

En ce qui concerne le calcul du temps d'intersection, la comparaison pour nos essais entre temps mesuré et temps calculé est satisfaisante (Tab.II.14).

Tc (°C)	Ø (mm)	H (%)	temps mesuré (mn)	temps calculé (mn)
230	32	6	31	34
230	42	6	49	52
230	52	6	65	74
260	32	6	19	22
260	42	6	39	36
260	52	6	53	57
230	42	50	68	70
260	42	110	70	69
260	42	170	87	88

Tableau II.14. Comparaison des temps d'intersection mesurés et calculés

II.3.4.3. Conclusions et perspectives

Grâce à ce double travail d'expérimentation et de modélisation, nous avons approfondi notre compréhension des phénomènes en jeu lors de la pyrolyse à basses températures d'un échantillon de bois massif. Le régime transitoire de montée en température d'un cylindre plongé dans un bain isotherme est essentiellement gouverné par la conduction de chaleur. Il apparaît également une vaporisation de l'eau, qui se traduit par un palier aux alentours de 100° C pour un bois au-dessus du point de saturation des fibres; en dessous, l'équilibre eau-vapeur se complique et se traduit par une forte inflexion des courbes autour de 112° C. Nous avons attribué le dépassement de la température de consigne à une réaction globalement exothermique. Une cinétique pseudo-homogène d'ordre un semble pouvoir approcher les mécanismes. Pourtant, au vu des résultats expérimentaux, on peut avancer que l'exothermicité est principalement due aux réactions secondaires des gaz de décomposition primaire des polymères constitutifs du bois (essentiellement des hémicelluloses) catalysées par le solide en cours de transformation. Par conséquent, les cinétiques ne peuvent être qu'hétérogènes. Cependant, en introduisant l'énergie d'activation et la constante de temps déterminées par une approche globale dans un modèle conduction-réaction qui prend en compte la phase liquide et sa vaporisation, nous modélisons des profils de température très proches de la réalité expérimentale. Bien que les paramètres du modèle n'aient pas été optimisés, l'accord relativement bon entre expérience et modèle valide nos interprétations des phénomènes physiques et nous dote d'un outil apte à prédire le temps optimum de traitement (temps d'intersection des profils $T(r,t)$).

D'autre part, cette étude a permis de mettre en évidence l'avantage à traiter directement en bain le bois humide, même vert. On peut penser que, grâce aux paliers de vaporisation, les contraintes mécaniques internes ont le temps de se relaxer (la lignine et les hémicelluloses humides passant leur transition vitreuse) et que cela explique la génération moindre de défauts. Ainsi, l'avantage est double: gain de temps et meilleure qualité des barreaux.

Pour la poursuite de ce travail, il serait intéressant d'approfondir les points suivants:

* mesures expérimentales:

- enthalpie de la réaction et variations avec les facteurs d'influence;
- dépendance de la conductivité avec l'humidité;
- phénomènes de vaporisation de l'eau liée
- diffusion du fluide caloporteur dans l'échantillon
- estimation des champs de pression développés dans l'échantillon
- recherche des catalyseurs éventuels

* optimisation de la modélisation

- une discrétisation iso-volume et non avec un pas en rayon constant permettrait certainement d'améliorer la précision (car les bilans se font pour des volumes constants)
- utiliser la méthode de Crank-Nicholson pour optimiser à partir des profils expérimentaux, par une méthode aux moindres carrées, les paramètres conductivité et enthalpie de réaction. (tous les autres étant déterminés expérimentalement)
- ajouter un terme de convection gazeuse et supprimer le terme de diffusion de l'eau liquide (qui s'avère négligeable).

CHAPITRE TROISIEME

CARACTERISATION PHYSICO- MECANIQUE DU BOIS RETIFIE

INTRODUCTION

Pour le nouveau matériau qu'est le bois rétifé, une connaissance qualitative et quantitative de ses propriétés physico-chimiques et mécaniques est indispensable pour assurer le meilleur développement de ses applications potentielles et l'optimisation du procédé d'obtention.

Toute détérioration ou changement de structure des constituants du bois, comme c'est le cas pour les hémicelluloses et les lignines lors des réactions de pyrolyse à basses températures, se traduit automatiquement par des modifications des caractéristiques mécaniques du matériau. Ainsi, nous pouvons noter que même lors d'un séchage haute-températures (100-180 °C), on observe des changements dans le comportement mécanique (Thomson, 1977). De manière générale, Stamm (1956), Rowell (1985) et Schaffer (1976) remarquent que la pyrolyse du bois fait relativement peu chuter le module d'Young et affecte principalement la dureté, la résistance à la rupture et le travail maximum à la rupture en flexion longitudinale, tandis que le comportement en compression est peu modifié. Il semblerait que la diminution des caractéristiques mécaniques puisse être exprimée par une loi cinétique d'Arrhénius d'ordre un.

Les effets des modifications chimiques sont difficiles à estimer. Des produits se sont dégradés, transformés. Des réarrangements moléculaires ont eu lieu avec départ de matière. La température a modifié les caractéristiques viscoélastiques des polymères qui sous l'effet de la chaleur se sont ramollis et ont commencé à s'écouler, puis en se refroidissant se sont figés dans des configurations différentes de leur configuration de départ. Schaffer (1976) a passé en revue les modifications des constituants d'un bois sec par traitement thermique en atmosphère inerte (Tab.III.1).

Ainsi, dans la zone des températures du traitement, les transformations sont complexes et il est difficile à-priori de prédire les conséquences sur les propriétés physico-mécaniques, car il y a compétition entre des réactions de dégradation qui rompent des liaisons et des réactions de réticulation avec création de nouvelles liaisons (Back, 1967), particulièrement au niveau de la lignine qui est plus condensée et plus rigide (Lapierre et al., 1986).

Afin d'estimer les effets du traitement sur le comportement mécanique, nous avons choisi d'utiliser plusieurs types d'essai :

** caractérisation par spectroscopie ultrasonore (méthode non destructive)*

L'analyse temps-fréquence de la propagation d'une onde ultrasonore (dans le domaine de fréquences 0 -5 MHz) dans un échantillon de bois selon les axes principaux de sa structure permet d'accéder aux composantes diagonales du tenseur des rigidités complexes (dans l'hypothèse de

T (°C)	changements observés
55	La structure naturelle de la lignine est altérée. Les hémicelluloses commencent à se ramollir.
70	Le retrait transversal du bois débute.
110	La perte de masse de la lignine démarre lentement.
120	Le taux d'hémicelluloses commence à décroître celui de cellulose α commence à augmenter. Les lignines commencent à se ramollir
140	Toute l'eau liée est libérée.
160	La lignine a fondu et commence à durcir à nouveau.
180	La perte de masse des hémicelluloses s'accélère. La lignine s'écoule dans les ponctuations
200	La masse du bois commence à décroître rapidement ; des résines phénoliques se forment. La cellulose se déshydrate au-dessus de cette température.
210	La lignine se durcit. La cellulose flue et commence à se dépolymériser. Les réactions passent d'endothermiques à exothermiques.
225	La cristallinité de la cellulose décroît , puis réaugmente.
280	La perte de masse de la lignine atteint 10%. La décomposition de la cellulose commence.
288	Température supposée de carbonisation.
300	Les hémicelluloses sont complètement dégradées.

Tableau III.1. Modifications en fonction de la température
(d'après Schaffer, 1976)

viscoélasticité linéaire). Elle permet ainsi d'accéder aux changements fins de structure dans tous les plans d'anisotropie du matériau. C'est cette méthode que nous avons choisie de développer au laboratoire pour l'étude des modifications de structure induites par le traitement. Nous la décrirons donc plus en détail, en consacrant un paragraphe à la méthodologie que nous avons suivie pour la mise au point du système expérimental et le choix d'un couple capteur-échantillon.

* caractérisation par vibrations forcées de poutres en flexion et torsion alternées (méthode non destructive)

Cette technique permet également de remonter aux modules complexes. Les fréquences sont beaucoup plus basses (centaines de Hz). Du fait de la nécessité d'utiliser des poutres à fort élancement, seules les modifications de comportement dans la direction longitudinale ont été étudiées.

* caractérisation du comportement par essais statiques (méthode destructive)

Au contraire des deux types d'essais déjà mentionnés, ce sont des essais destructifs. Des essais ont été effectués pour déterminer le comportement en flexion 4 points selon la direction longitudinale et en compression selon le sens longitudinal, ainsi que des essais complémentaires en flexion 3 points .

* caractérisation par analyse thermomécanique (méthode destructive)

Afin de mieux comprendre comment le comportement rhéologique du matériau a été affecté par le traitement, nous l'avons étudié par analyse thermomécanique, en le comprimant dans la direction radiale sous montée en température (essai de fluage par pénétrométrie).

Excepté les essais en compression statique effectués sur un échantillonnage d'épicéa et les essais en TMA limités au peuplier et au douglas, tous ces essais ont été effectués sur trois essences: peuplier, hêtre, douglas ayant subi quatre traitements à différentes températures (230-240-250-260 °C) sous atmosphère d'azote dans le four Levêque de durée fixe 15 mn. Pour chaque essai et chaque état, plusieurs échantillons ont été testés et nous donnons pour tous les résultats les valeurs moyennes et les coefficients de variation. Les moyennes ont été comparées par test statistique (cf annexe IV) afin de voir si les variations étaient significatives. Les essais complémentaires en flexion trois points ont porté sur la comparaison des traitements en bain d'huile et des traitements en atmosphère gazeuse inerte et ont été effectués sur du peuplier et du pin.

Un échantillonnage plus important fourni par le CTBA a été testé (Böhnke, 1992). Il s'agit d'épicéa traité à 250 - 260 - 270 ° C pendant 15 mn. Nous avons mesuré les paramètres ultrasonores des échantillons, puis ceux-ci ont été testés en compression au CTBA.

III.1 MODIFICATIONS PHYSICO-CHIMIQUES

Nous ne nous étendons pas sur l'étude des modifications chimiques du bois sous l'action du traitement. Ce sujet, ainsi que l'étude fine des cinétiques et des mécanismes de réaction, est actuellement l'objet d'une autre thèse au laboratoire (Avat). Cependant, afin de préciser la nature des modifications chimiques consécutives au traitement, nous présentons dans ce paragraphe un aperçu des résultats obtenus.

III.1.1 Modifications chimiques des constituants

L'analyse élémentaire (carbone, hydrogène, oxygène, azote) (Bourgois et al., 1988) montre que pour un temps de séjour fixe, une augmentation de température provoque une augmentation du pourcentage de carbone et une diminution des pourcentage d'hydrogène et d'oxygène. Le paramètre température joue de manière beaucoup plus significative que le paramètre temps de séjour.

** cellulose*

Il semble que la cellulose semi-cristalline ait peu été affectée par le traitement. Les spectres de diffraction aux rayons X sont peu modifiés (fig.III.1).

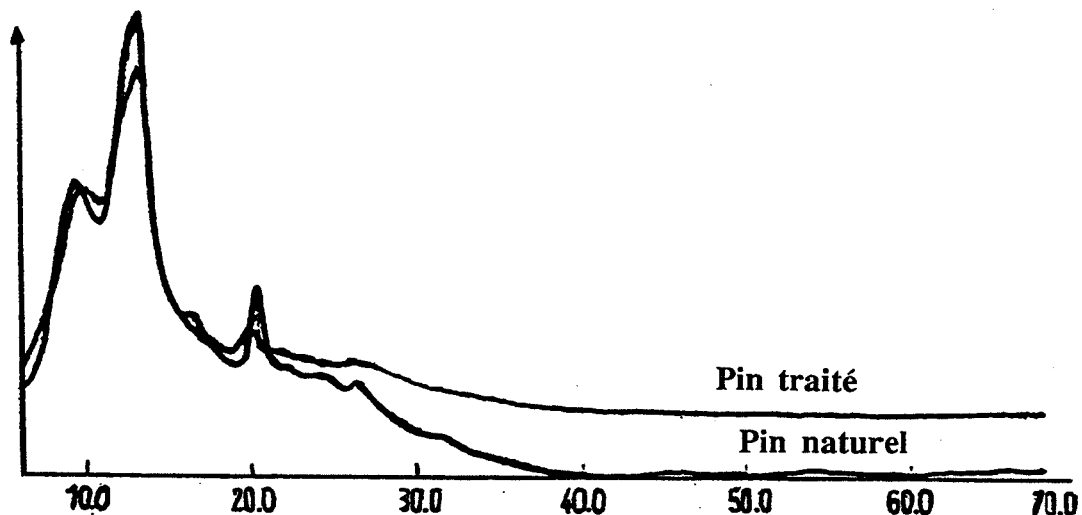


Figure III.1. Diagrammes de diffraction X de la cellulose du bois naturel et du bois traité

S'il y a eu des modifications, elles ont principalement eu lieu dans les zones amorphes des fibrilles.

** hémicelluloses*

La cinétique de dégradation est très rapide: le temps de demi-vie des pentosanes à 260° C n'est que de 1/4 d'heure. Ceci confirme le fait que les hémicelluloses sont les constituants les plus fragiles thermiquement. Le pourcentage de pentosanes des feuillus étant supérieur à celui des résineux, la décroissance du taux d'hémicelluloses commence plus tôt et pour des températures plus faibles .

** lignine*

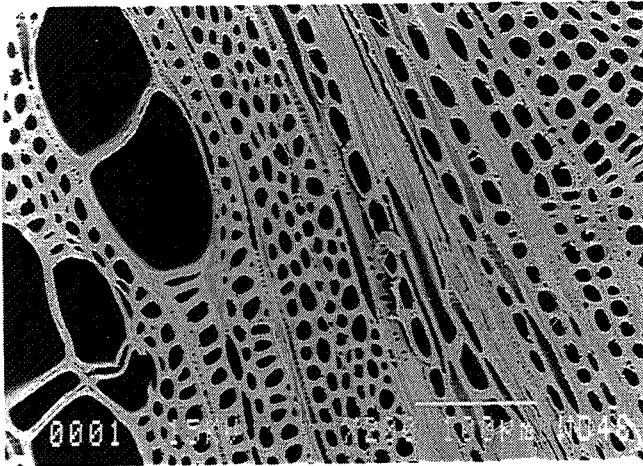
En fait, ce n'est pas précisément la lignine qui est dosée, mais le pourcentage d'insolubles dans l'acide sulfurique (72 %) après extraction à un mélange alcool-benzène. La lignine est attaquée dès le début de la réaction à 260° C. Le taux de lignine Klason augmente rapidement en début de réaction (Bourgois et al., 1989). Cette augmentation peut être l'indice d'une thermocondensation des produits de dégradation des hémicelluloses. D'autre part, il semble que la lignine se "résinifie" et résiste ainsi mieux aux effets thermiques. Elle apparaît moins hydrogénée, plus carbonée et moins polaire.

** les liaisons*

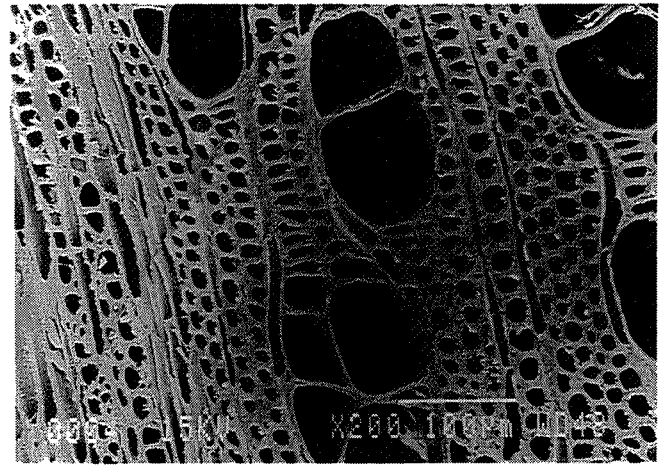
Une étude par spectrométrie infrarouge sur les composés rétifés a permis de mettre en évidence des modifications aux niveau des liaisons chimiques. La bande la plus importante est due aux vibrations des groupements hydroxyles de la cellulose et des phénols de la lignine. On observe un déplacement vers les basses fréquences ainsi qu'un accroissement de l'intensité, attribué à l'apparition d'une conjugaison entre les substituants carbonyle et éthylénique. On observe un accroissement des doubles liaisons C = C et C = O.

III.1.2. Modifications de la structure anatomique

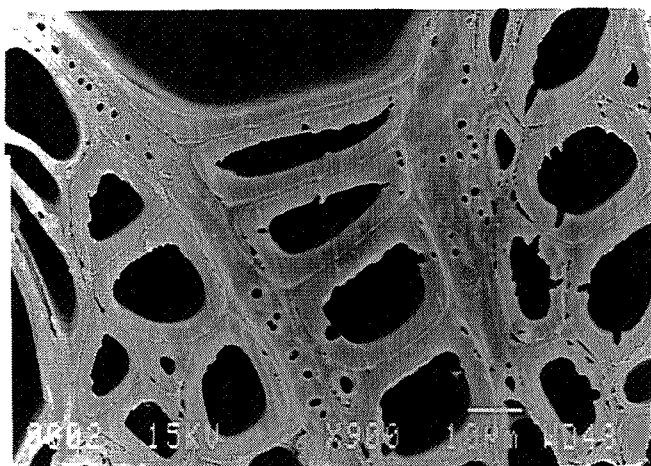
Nos différentes observations au microscope sur des coupes minces de bois naturel et de bois traité à différentes températures sur plusieurs essences n'ont pas permis de mettre en évidence de changements notables de la structure, même si les comportements à l'imprégnation et à la coupe étaient très différents (le bois rétifé est beaucoup plus difficile à couper et s'effrite). Nous présentons ci-contre les photographies au microscope électronique à balayage (fig.III.2) d'échantillons de charme naturel et traité taillés dans le plan transversal (Nebesarova, 1992) qui illustrent notre propos. Cependant, comme le fait remarquer Rowell (1990), la conservation de l'intégrité de la structure ne signifie pas que les propriétés mécaniques n'ont pas été touchées. L'intégrité est essentiellement estimée visuellement, or un



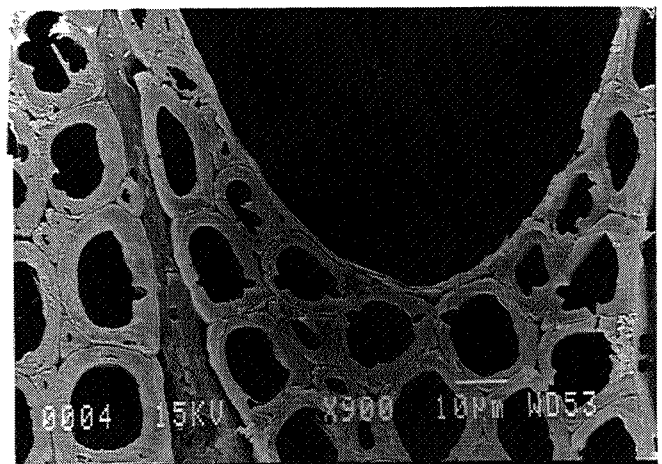
CHARME NATUREL (x 200)



CHARME RETIFIE (x 200)



CHARME NATUREL (x 900)



CHARME RETIFIE (x 900)

Figure III.2. Photographies au microscope électronique de charme naturel et charme traité (d'après Nebesarova, 1992)

morceau de bois peut ne posséder qu'une fraction de ses propriétés mécaniques et malgré cela, conserver complètement son aspect, même à des niveaux très fins de description.

III.1.3 Modifications de la masse volumique

Nous avons déjà fait remarquer que la masse volumique était un paramètre physique primordial dans la caractérisation du bois. A partir des densités mesurées sur nos différents échantillons lors des essais mécaniques, nous avons cherché à estimer l'influence du traitement sur ce paramètre.

* Résultats sur l'échantillonnage A (peuplier, hêtre, douglas).

Le tableau III.2 résume les résultats pour les trois essences étudiées. La perte de masse consécutive au traitement est calculée par $\Delta m_h = \frac{m_f - m_0}{m_0}$, puis à partir de cette valeur, on calcule la perte de masse sèche $\Delta m_s = \Delta m_h - H$, H étant le taux d'humidité déterminé sur des échantillons témoins avant traitement.

L'échantillonnage se répartit de la façon suivante:

essais ultrasonores : 4 cubes 20*20*20 mm /essence/traitement

essais poutres vibrations libres : 10 poutres 320*5*20 mm / essence / traitement

essais poutres flexion quatre points: 7 poutres 340*20*20 peuplier/traitement

4 poutres 340*20*20 hêtre&douglas /traitement

Les courbes des variations relatives de la densité (fig.III.3) en fonction de la température de traitement montrent que la variation de densité n'est pas continue. Dans un premier temps, elle diminue, puis elle augmente légèrement pour ensuite chuter. Les comparaisons statistiques des moyennes montrent que les variations sur le hêtre et le peuplier sont significatives pour toutes les températures de traitement tandis que pour le douglas, elles ne le sont pas pour les premières températures. La densité ne commence à chuter qu'à partir de 240 ° C. Deux facteurs jouent sur les variations de densité: d'une part, la perte de masse du fait de la décomposition des constituants, qui diminue la densité; d'autre part le retrait volumique, du au départ d'humidité et aux réactions de volatilisation (cf §II), qui la fait augmenter.

Afin de cerner plus précisément ce phénomène de densification apparente, nous avons déterminé la densité "vraie", c'est-à-dire uniquement la densité de la matière ligno-cellulosique sans la prise en compte des lumières des cellules. Les mesures ont été faites sur du peuplier avec le pycnomètre à hélium Accupyc 1330. La comparaison statistique des moyennes montre que les variations de densité consécutives aux traitement sont significatives, malgré la grande dispersion des résultats sur plusieurs échantillons. La figure III.4 illustre les variations de la densité vraie du peuplier avec le traitement.

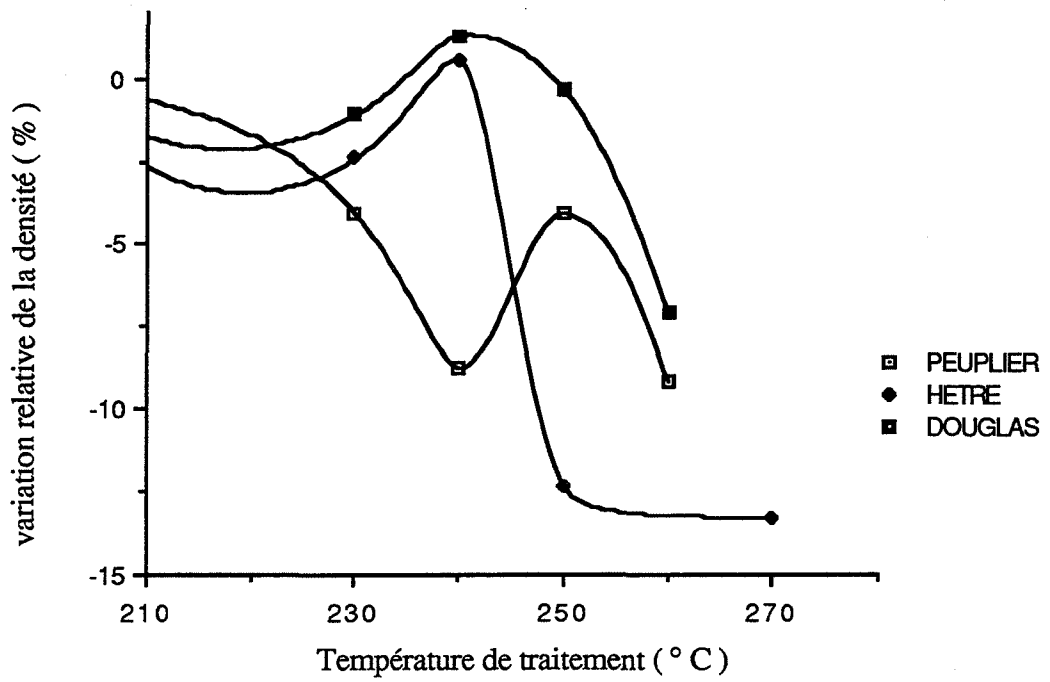


Figure III.3. Variations relatives de la masse volumique apparente avec le traitement

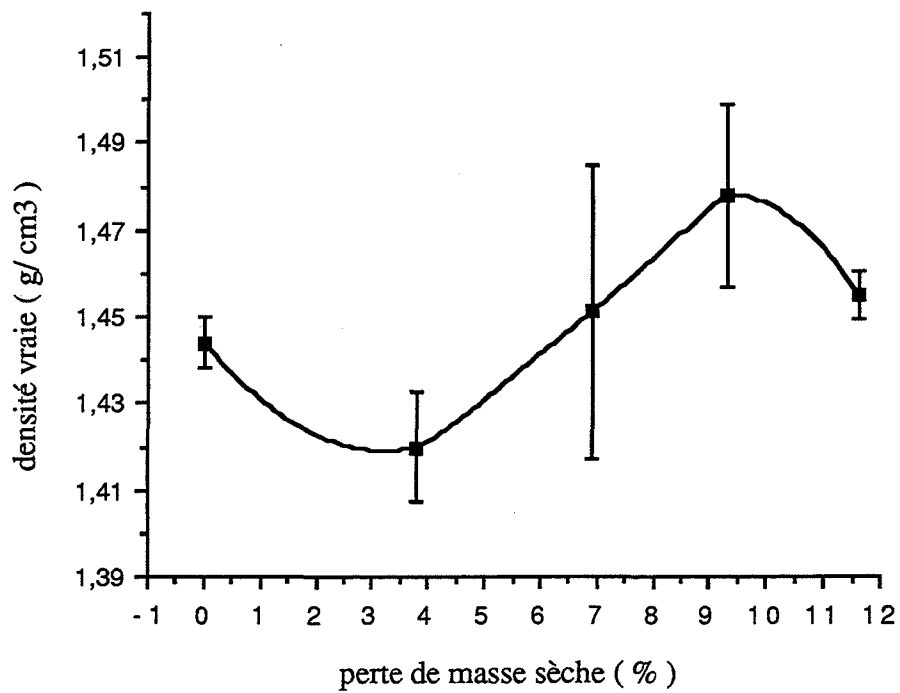


Figure III.4. Variations de la densité vraie du peuplier

Le phénomène mentionné sur les variations de la densité apparente apparaît aussi sur la densité vraie: La densité diminue, puis réaugmente pour rediminuer ensuite et la courbe en fonction de la perte de masse sèche présente une inflexion. Le point d'inflexion est observé pour le traitement de 240 ° C.

Ce n'est donc pas une variation du volume poreux cellulaire qui est à son origine, mais plutôt une réorganisation des composants macromoléculaires dans la paroi, qui conduirait à une diminution des volumes intermoléculaires et une plus grande compacité de la matière.

** Résultats sur l'échantillonnage B (épicéa)*

Le grand nombre d'échantillons par série (62) permet une étude statistique plus poussée. Les différents traitements thermiques ont été effectués sur des barreaux homogènes. Les barreaux ont ensuite été découpés en cinq parties, la première servant de référence (série 1), la deuxième traitée à 250 ° C (série 2), la troisième traitée à 260 ° C (série 3), la quatrième traitée à 270 ° C (série 4), la partie restante étant conservée pour des analyses ultérieures éventuelles. Ainsi, il est possible de suivre les variations induites par le traitement par rapport à un matériau de base de densité identique. Nous avons étudié la perte de masse en fonction de la densité du barreau naturel et trouvé que pour tous les traitements, la perte de masse de l'échantillon était quasiment indépendante de sa densité initiale. Densité et perte de masse étant des variables statistiquement indépendantes, nous pouvons étudier la variation de la densité en fonction de la perte de masse. Lorsqu'on lisse la courbe expérimentale (fig. III.5), on observe le même type de variation que sur l'échantillonnage précédent.

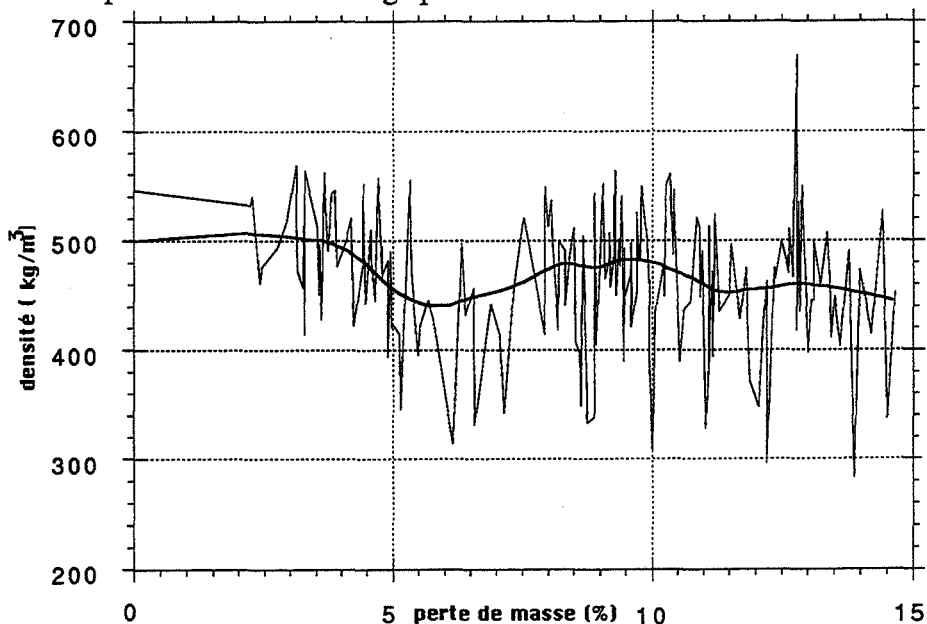


Figure III.5. Variation de la densité avec la perte de masse sèche. Epicéa

T traitement	Δm_h (%)	Δm_s (%)	densité			densité (kg/m ³)	H (%)	ΔL (%)	ΔR (%)	ΔT (%)
			ech US	ech vib	ech flexion					
PEUPLIER										
NATUREL	0	0	489±9	479±23	498±20	489±22	6,0±0,1	0,25±0,06	1,45±0,1	13,4±0,7
230 °C	15,00±0,97	3,80±1,12	476±10	437±33	446±47	469±34	2,8±0,2	0,20±0,04	0,6±0,1	2,9±0,2
240 °C	18,14±1,65	6,94±1,70	380±6	452±17	455±52	446±58	2,1±0,1	0,18±0,03	0,8±0,1	2,5±0,4
250 °C	20,51±1,36	9,31±1,41	480±7	476±35	455±45	469±41	2,2±0,1	0,20±0,04	0,8±0,2	2,3±0,8
260 °C	22,78±1,29	11,58±1,34	466±8	414±36	453±53	444±47	2,1±0,1	0,18±0,03	0,6±0,1	2,0±0,1
HETRE										
NATUREL	0	0	692±26	725±15	706±22	708±28	6,3±0,9	0,30±0,01	1,51±0,2	15,2±0,1
230 °C	13,59±1,29	1,39±1,39	705±16	682±9	687±32	691±26	3,0±0,1	0,20±0,05	0,84±0,3	2,9±0,3
240 °C	15,01±1,59	2,81±1,69	734±15	696±20	707±39	712±34	2,8±0,2	0,20±0,07	0,73±0,2	2,6±0,1
250 °C	19,00±2,36	6,8±2,46	641±7	624±15	598±22	621±26	2,3±0,1	0,18±0,02	0,65±0,1	2,1±0,1
260 °C	27,5±4,35	15,3±4,45	618±5	625±17	543±11	614±22	2,2±0,1	0,18±0,03	0,60±0,1	2,0±0,1
DOUGLAS										
NATUREL	0	0	486±9	537±32	543±11	522±36	6,1±0,1	0,25±0,01	1,47±0,07	10,6±1,2
230 °C	12,83±1,01	0,73±1,41	529±12	485±25	526±39	516±43	3,7±0,1	0,15±0,07	0,76±0,06	4,9±0,1
240 °C	13,65±1,57	1,55±1,97	515±43	549±30	523±49	529±48	3,4±0,1	0,13±0,03	0,84±0,1	3,8±0,3
250 °C	15,10±1,22	3,00±1,62	503±10	551±29	506±23	520±34	3,0±0,1	0,10±0,01	0,45±0,28	3,3±0,2
260 °C	16,27±1,75	4,17±2,15	454±8	487±26	514±67	485±53	2,8±0,1	0,20±0,01	0,81±0,42	2,7±0,3

Tableau III.2. Caractéristiques physico-chimiques en fonction du traitement
(hêtre, peuplier, douglas)

Nous voyons donc que pour toutes les espèces considérées, nous observons une variation non monotone de la masse volumique. Elle commence par diminuer, puis elle augmente légèrement, passe par un maximum et décroît à nouveau.

III.1.4. Variations de l'hygroscopie du matériau

Les cubes testés aux ultrasons ont ensuite servis à la détermination du taux d'humidité et du retrait dans les trois directions entre l'état humide et l'état anhydre, par dessiccation en étuve à 103°C jusqu'à obtention d'une masse constante. Nos échantillons présentent un faible taux d'humidité, car ils sont de petite taille et ont largement eu le temps de sécher à l'air libre. Ce taux d'humidité est donné à titre indicatif, car les essais ayant eu lieu en atmosphère ambiante, il est possible qu'il y ait eu des fluctuations selon les saisons dans les conditions atmosphériques, mais elles jouent surtout sur les taux du bois naturel, les bois rétifés y étant très peu sensibles.

On remarque immédiatement que l'humidité d'équilibre des échantillons traités (fig.III.6) et le retrait volumique (fig III.7) sont très inférieurs à ceux du bois naturel. Nous avons déjà observé une nette diminution des propriétés d'hygroscopie suite au traitement (Böhnke, 1989, Böhnke, 1991) et il était apparu que les essences les plus hydrophiles devenaient les plus hydrophobes et que la diminution du caractère hydrophile augmentait avec la température de traitement et le temps de séjour dans le réacteur.

Les modifications des propriétés de sorption et des phénomènes de retrait et de gonflement font également l'objet d'études plus poussées au laboratoire, car c'est précisément ce point qui fait l'intérêt du procédé comme traitement de stabilisation dimensionnelle. L'abaissement du taux d'humidité a une autre conséquence: il empêche la croissance des micro-organismes (champignons). Les effets sont spectaculaires: le peuplier traité à 260°C-15 mn passe de la classe 5 (résistance très faible aux agents de dégradation) à la classe 1 (imputrescible) (Khébibèche et al, 1991). Les explications de ce phénomène sont pour l'instant partielles et demandent à être approfondies: le traitement détruit principalement les groupements hydroxyles et les hémicelluloses qui permettaient la fixation des molécules d'eau. D'autre part, la "réticulation" de la lignine peut également jouer un rôle: elle abaisse le nombre de sites disponibles pour l'adsorption des molécules d'eau et fait écran à leur passage. La surface des parois cellulaires apparaît comme inactivée et sa polarité a été modifiée (Christensen, 1991).

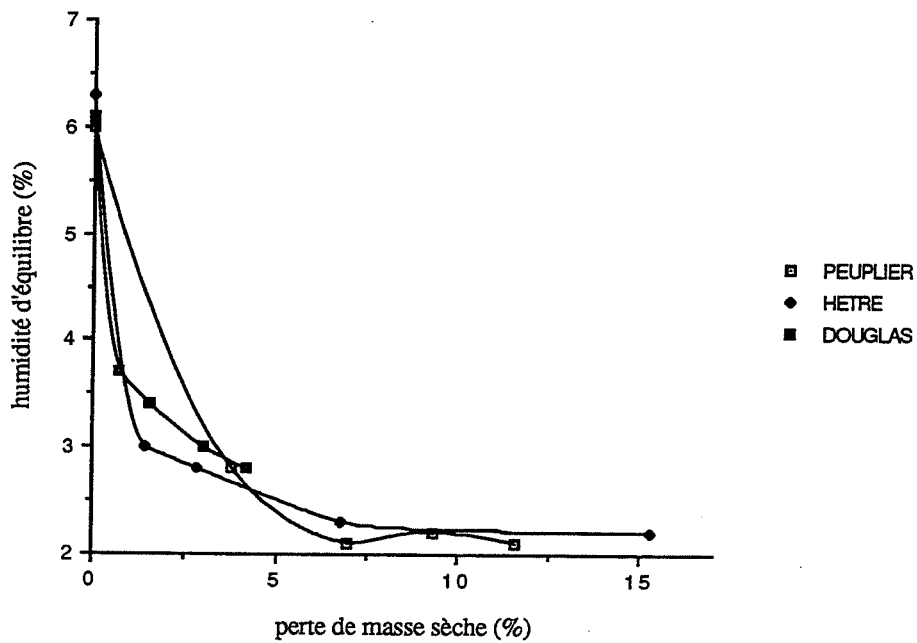


Figure III.6. Evolution du taux d'humidité d'équilibre avec le traitement

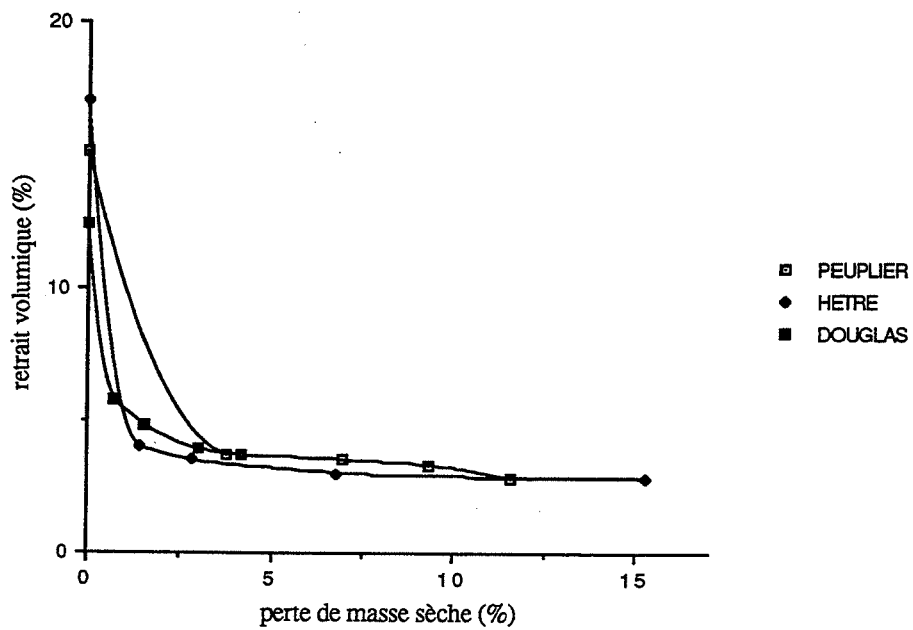


Figure II Evolution du retrait volumique avec le traitement

III.2. MODIFICATIONS DES PROPRIETES MECANQUES

III.2.1. Analyse de la propagation d'une impulsion ultrasonore

Quand nous travaillons dans le domaine des fréquences ultrasonores (qqes kHz à qqes dizaines de MHz), nous nous intéressons à la propagation d'ondes dites élastiques. Ce sont des ondes de matière, qui résultent de déplacements de particules. Elles n'existent que dans les milieux fluides ou solides, contrairement aux ondes électromagnétiques qui peuvent se propager dans le vide et leur propagation est régie par l'équation de la mécanique de Newton (fig.III.8).

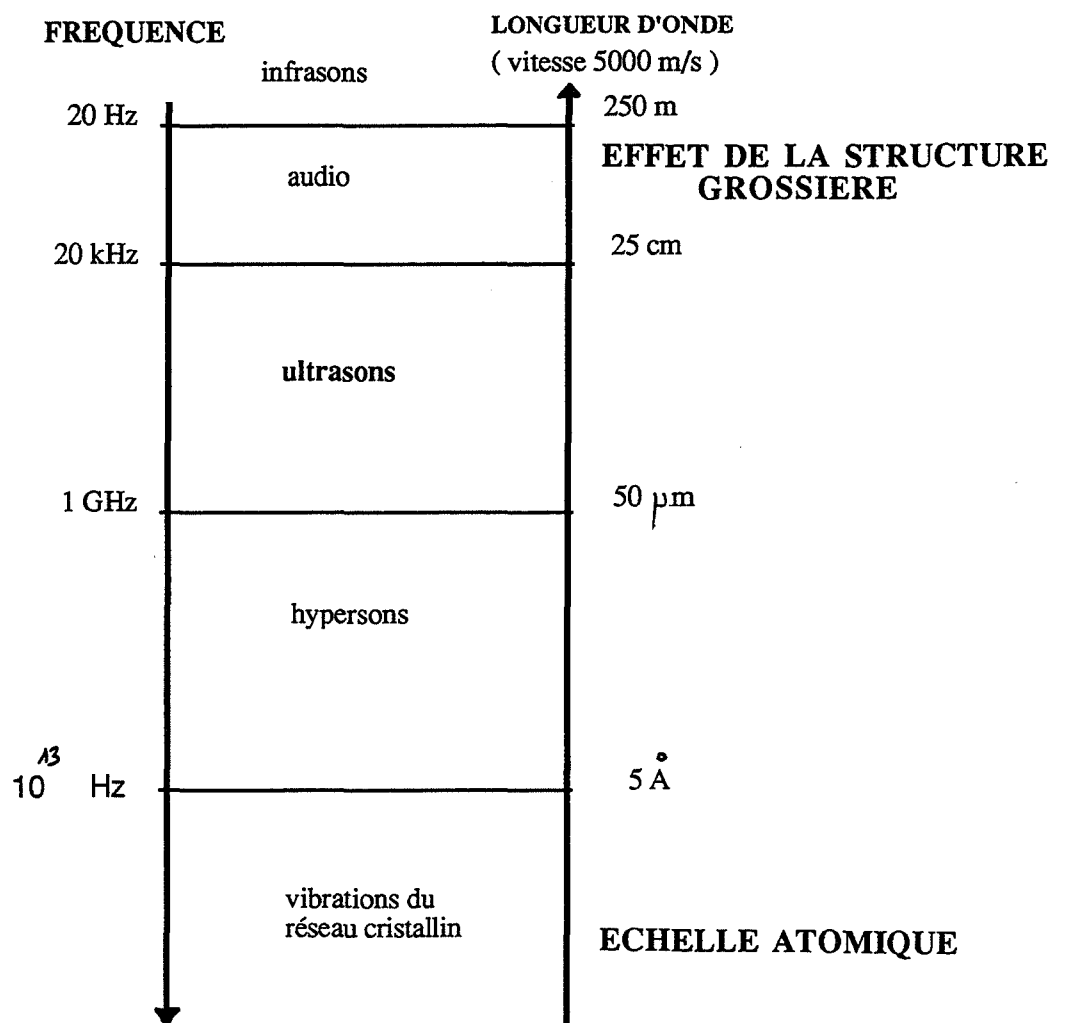


Figure III.8. Les différents types de vibrations mécaniques

Jusqu'à la première guerre mondiale, on ne s'était intéressé à ces ondes que dans le but d'analyser les modes de propagation des tremblements de terre. Puis Langevin et Chilowsky eurent

l'idée en 1916 d'utiliser la piézoélectricité, découverte par les Curie en 1880, pour émettre grâce à des transducteurs piézoélectriques des ondes élastiques dans l'eau de fréquence environ 150 kHz. L'application immédiate de ce dispositif était la détection d'obstacles par réflexion des ondes, les dits obstacles étant en l'occurrence des sous-marins ennemis. Le sonar (SOund NAVigation and Ranging) était né.

Depuis, les domaines d'application des ultrasons n'ont cessé de s'étendre, en particulier celui du contrôle non-destructif des matériaux. En effet, l'analyse de la propagation d'ondes élastiques dans un matériau peut servir à la caractérisation mécanique des matériaux, à la mise en évidence des paramètres de structure dans le cas de matériaux hétérogènes, à la détection de défauts, à la prévision de la rupture... Elle est relativement facile à mettre en oeuvre et présente l'avantage d'être non-destructive, donc de pouvoir servir dans des contrôles en continu de qualité de pièces ou des contrôles de procédés de fabrication.

Dans le cas de matériaux fortement hétérogènes, viscoélastiques, donc absorbants et dispersifs comme le bois, l'analyse de la propagation des ondes est une source très riche d'informations, mais malheureusement, les problèmes inverses (car le but est de remonter au comportement par analyse des signaux) sont très délicats à résoudre. Nous développerons la mise en équations dans le cas simple d'un matériau anisotrope, continu, homogène et illimité et d'une onde monochromatique.

Nous essayerons donc de voir la relation qui existe entre les propriétés élastiques et les vitesses de propagation. Il sera bon également de rappeler l'effet de la composante visqueuse dans l'équation de propagation, ainsi que la signification de la relation de dispersion. Après avoir donné les définitions utiles pour pouvoir comprendre les phénomènes de propagation d'ondes planes progressives élastiques, nous évoquerons rapidement les diverses perturbations qui peuvent apparaître sur le trajet d'une onde (réflexion, réfraction , guidage d'ondes etc ...).

Une fois ses considérations théoriques exposées, nous exposerons les méthodes pratiques d'analyse de la propagation des ondes en rappelant l'équivalence théorique entre méthode impulsienne et analyse en fréquence par excitation harmonique. Puis nous détaillerons notre montage expérimental, la méthodologie suivie pour le choix des échantillons et des transducteurs, les essais préliminaires sur différents matériaux: duraluminium, PVC et hêtre. Finalement, nous exposerons nos résultats sur les échantillonnages déjà décrits dans l'introduction de ce chapitre (épicéa , hêtre, peuplier, douglas).

III.2.1.1.Rappels théoriques

Deux types d'ondes peuvent habituellement se propager dans le volume d'un matériau: les ondes longitudinales (ou de compression), dont le mouvement des particules - direction de polarisation -

est parallèle à la direction de propagation, les ondes transversales (ou de cisaillement) dont la direction de polarisation est perpendiculaire à la direction de propagation. La vitesse de phase de ces ondes dépend des propriétés mécaniques du matériau considéré. La faible amplitude des ondes habituellement utilisées laisse supposer que leur propagation obéit aux lois de l'élasticité linéaire et que le matériau n'est pas altéré par leur passage.

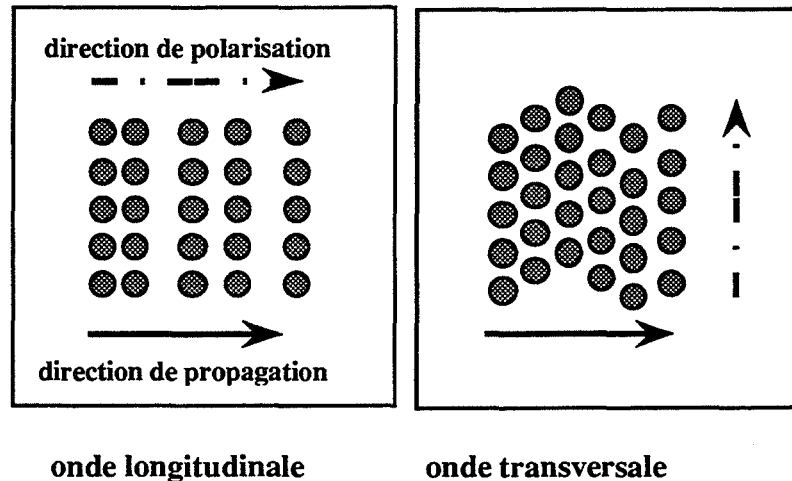


Figure III.9. Les différents types d'onde

Ces ondes ne sont que des modes particuliers de vibration d'un solide. Pour des géométries particulières, il peut exister d'autres types d'ondes: ondes de surface ou ondes de Rayleigh, ondes de plaque ou ondes de Lamb, ondes de torsion dans les cylindres, ondes de flexion dans les barres etc... En général, une onde se propageant dans un solide est rarement pure, car tous les modes de la structure se superposent et sont imposés par les conditions aux limites de l'échantillon.

Le principe de base de la mesure des paramètres ultrasonores - vitesse et atténuation du signal - consiste à perturber la propagation de l'onde en interposant sur son trajet un échantillon de matériau. Le décalage temporel du signal perturbé permet de remonter à la vitesse et par suite, aux rigidités correspondantes, quant à l'atténuation de l'amplitude, due à la rupture d'impédance mécanique et à l'absorption du matériau, elle fournit l'angle de perte correspondant.

Les variations de ces quantités permettent de suivre les variations de propriétés de matériaux ayant subis divers traitements ou encore le suivi de leur état d'endommagement. Les diverses possibilités d'utilisations des ultrasons, les corrélations avec d'autres propriétés ainsi que les différentes techniques de mesure mises au point ont été largement étudiées par de nombreux auteurs dont on peut citer entre autres Truell et al. (1969), Krautkramer et Krautkramer (1977), Vary (1980), Papadakis (1990).

III.2.1.1.1 Résolution de l'équation du mouvement. Cas d'une onde plane harmonique (Chevalier, 1989)

Si l'on écrit le déplacement solution sous la forme :

$$\mathbf{u}(\mathbf{x},t) = A.P \exp(i(\omega t - \mathbf{k}^* \cdot \mathbf{v} \cdot \mathbf{x})) \quad (1)$$

(les quantités en gras représentent des vecteurs et $*$ une quantité complexe . Le nombre d'onde \mathbf{k} est complexe et peut se mettre sous la forme $\mathbf{k}^* = \mathbf{k} - i\alpha$)

et si l'on fait également l'hypothèse que le milieu est infini, que le matériau est homogène et que son comportement est viscoélastique linéaire, entièrement caractérisé par son tenseur de relaxation $\mathbf{C}(t) = (C_{ijkl}(t))$; sa loi de comportement mécanique s'exprime en régime isotherme par la convolution suivante:

$$\sigma_{ij}(t) = \int_t^{\infty} C_{ijkl}(t-\tau) \frac{d\varepsilon_{kl}(\tau)}{d\tau} d\tau \quad (2)$$

$$\text{où } \varepsilon_{kl} = \frac{1}{2} \left[\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right] \quad (3)$$

est le tenseur des petites déformations.

En appliquant la transformation de Fourier à la relation (2), on transpose cette loi de comportement temporel dans l'espace fréquentiel où elle prend une forme analogue aux lois de l'élasticité linéaire :

$$(\mathcal{F} \mathcal{F} = \mathcal{F}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(t) \exp(-i\omega t) dt)$$

$$\mathcal{F}(\sigma_{ij}) = C^*_{ijkl}(\omega) \mathcal{F}(\varepsilon_{kl}) \quad (4)$$

on introduit alors la notion de rigidité complexe du matériau où

$$C^*_{ijkl}(\omega) = i\omega \mathcal{F}(C_{ijkl}) = i\omega \int_{-\infty}^{+\infty} C_{ijkl}(t) \cdot \exp(-i\omega t) dt \quad (5)$$

Lorsqu'on remplace dans l'équation du mouvement le déplacement $\mathbf{u}(\mathbf{x},t)$ tel que nous l'avons défini en (1), la forme duale obtenue est :

$$\{ \mathbf{k}^{*2} \cdot C^*_{ijkl}(\omega) \nu_j \nu_l - \rho \omega^2 \delta_{ij} \} P_k = 0 \quad (6)$$

où $\delta = (\delta_{ij})$ est le tenseur de Kronecker

Le tenseur complexe d'ordre 2, $\Gamma^* (\omega) = (\Gamma^*_{kl} (\omega))$, dont l'équation (6) pose le problème aux valeurs et aux vecteurs propres est appelé tenseur de Christoffel.

La valeur propre

$$\lambda^* = \frac{\rho v^2}{(1 - i \frac{\alpha v}{\omega})} \text{ est solution de } \det (\Gamma^*_{kl} - \lambda^* \delta_{kl}) = 0$$

Lorsque l'atténuation α est faible et le terme $\frac{\alpha v}{\omega}$ petit devant 1

$$\lambda = \rho v^2 (1 + 2i \frac{\alpha v}{\omega})$$

ρv^2 représente alors la partie réelle de la rigidité complexe diagonale et $2 \frac{\alpha v}{\omega}$ la tangente de

l'angle de perte, soit le rapport de la partie imaginaire à la partie réelle.

On voit donc qu'à partir de la mesure des vitesses et des atténuations d'ondes se propageant dans les directions principales du matériau, on a en théorie accès à toutes les composantes diagonales du tenseur C^*_{ijkl} et que la mesure dans une direction quelconque d'un plan de symétrie permet de déterminer les composantes non diagonales, moyennant une procédure d'optimisation des valeurs en fonction de l'angle de l'onde incidente (Vinh, 1981, Hosten et Castagnede, 1983, Every et Sachse, 1990).

III.2.1.1.2. Atténuation des ondes planes - dispersion.

L'atténuation de l'amplitude d'une onde plane se propageant dans un solide peut être due à plusieurs processus de pertes d'énergie. On peut distinguer ceux qui sont d'origine géométrique (élargissement du faisceau par diffraction, réflexion et réfractions multiples sur les parois de l'échantillon, conversion de mode) et ceux d'origine intrinsèque (interaction de l'onde avec la structure du matériau).

Les pertes d'énergie intrinsèques peuvent s'écrire comme la somme d'une atténuation due aux mécanismes de diffusion (scattering), qui redistribuent l'énergie en une multitude de petites ondes et d'une atténuation due aux phénomènes d'absorption, qui transforme l'énergie directement en chaleur (Anfray, 1985).

* diffusion

La diffusion a lieu aux frontières d'impédances acoustiques différentes (l'impédance acoustique est définie comme le produit de la densité par la vitesse). La rupture d'impédance peut être le résultat d'une variation dans la densité ou dans le module élastique. L'amplitude de la perte d'énergie résultant de la diffusion dépend du rapport entre la longueur d'onde de l'onde et des dimensions du diffuseur à l'origine de cette rupture d'impédance. Il existe principalement trois régimes d'atténuation par diffusion (Tab.III.3).

Relation entre longueur d'onde et dimension du diffuseur	mécanisme	dépendance fréquentielle de l'atténuation
$\lambda \gg D$	Rayleigh	Vf^4
$\lambda \approx D$	stochastique	Df^2
$\lambda \ll D$	diffusion	$1/D$

Tableau III.3. Les différents mécanismes de diffusion

* absorption

Les pertes d'énergie par absorption peuvent être dues à la viscosité du matériau. Dans ce cas, l'atténuation augmente selon le carré de la fréquence. D'autre part, quand une onde ultrasonore traverse un matériau, il s'ensuit une augmentation de température dans les zones où le solide est sous compression et un flux de chaleur des régions comprimées vers les régions tendues. Si le flux est assez rapide, il en résultera une perte d'énergie de l'onde par augmentation de l'entropie du système. Cette fois-ci encore, l'atténuation dépend du carré de la fréquence.

Les matériaux qui présentent des variations de vitesse dépendant de la fréquence sont dit dispersifs. Si le milieu est dispersif, pour chaque "phase" ou composante fréquentielle, il existe une vitesse particulière de phase V_p tandis que le maximum d'amplitude voyage avec une vitesse dite de groupe, V_g (Dieulesaint et Royer, 1974).

$$\text{on a: } V_p(f,\lambda) = f\lambda = \frac{\omega}{k} \quad \text{et} \quad V_g(f,\lambda) = -\lambda^2 \frac{\partial f}{\partial \lambda} = \frac{\partial \omega}{\partial k}$$

Les mécanismes qui donnent lieu à une absorption dépendant de la fréquence sont également accompagnés par de la dispersion. Dans les milieux élastiques où la dispersion est due à des interférences d'origine géométrique (guide d'ondes, ondes de Rayleigh ...), la vitesse de groupe décroît généralement avec la fréquence. Dans ce cas, la dispersion est dite normale. En milieu

viscoélastique où la dispersion est d'origine intrinsèque, la vitesse de phase est en général croissante avec la fréquence et la dispersion est dite inverse (Curutcharry, 1974). Cependant, la notion de vitesse de groupe impose une distance minimale de propagation pour que l'onde se regroupe en paquets. En milieu viscoélastique, du fait de l'atténuation préférentielle des hautes fréquences, ce regroupement en paquets peut ne pas se faire et la notion de vitesse de groupe perd son sens (Bourbier et al, 1986). La vitesse donnée par le temps d'arrivée ne correspond ainsi à aucune vitesse particulière aisément définissable.

III.2.1.1.3. Réflexion et réfraction des ondes

Lorsqu'une onde ultrasonore se propage dans un matériau et frappe la surface de séparation de deux milieux, une partie de l'énergie est transmise tandis que le reste est réfléchi. Le coefficient de réflexion est fonction des deux impédances caractéristiques des deux milieux. Dans de nombreux cas, un troisième milieu est interposé entre les deux milieux (couplant). La relation qui exprime le coefficient de transmission est alors complexe et dépend du rapport de l'épaisseur de la lame et de la longueur d'onde. Si c'est un nombre entier de demi-longueurs d'onde, l'énergie est alors totalement transmise. Dans le cas où l'épaisseur est un multiple impair du quart de la longueur d'onde, l'énergie transmise est alors minimale. Dans le cas où e est très petit devant l , l'énergie transmise est quasiment égale à 100%.

Lorsqu'une onde plane longitudinale ou transversale rencontre sous incidence oblique la surface de séparation de deux milieux, il y a un phénomène de conversion de mode et à la fois des ondes longitudinales réfléchies et transmises et des ondes transversales réfléchies et transmises apparaissent.

III.2.1.1.4. Spectroscopie ultrasonore

Lorsqu'on injecte dans un matériau une onde ultrasonore pulsée de large bande, la réponse à cette impulsion sera constituée de la superposition de la réponse de ses composantes fréquentielles. Lorsque l'impulsion ultrasonore traverse le matériau, les composantes fréquentielles associées au signal d'entrée sont modifiées (Gericke, 1970, Adler et Fitting, 1980, Adler, 1991). Ainsi, une impulsion donnée ressortira avec un spectre en fréquence différent après avoir traversé des matériaux différents. L'analyse spectrale de l'impulsion transmise fournit une "signature" ultrasonore qui est générique du type particulier de microstructure examinée.

En faisant l'hypothèse que le système est linéaire et invariant, les deux représentations du signal temporelle $h(t)$ et fréquentielle $H(f)$ sont équivalentes et reliées par la transformation de Fourier.

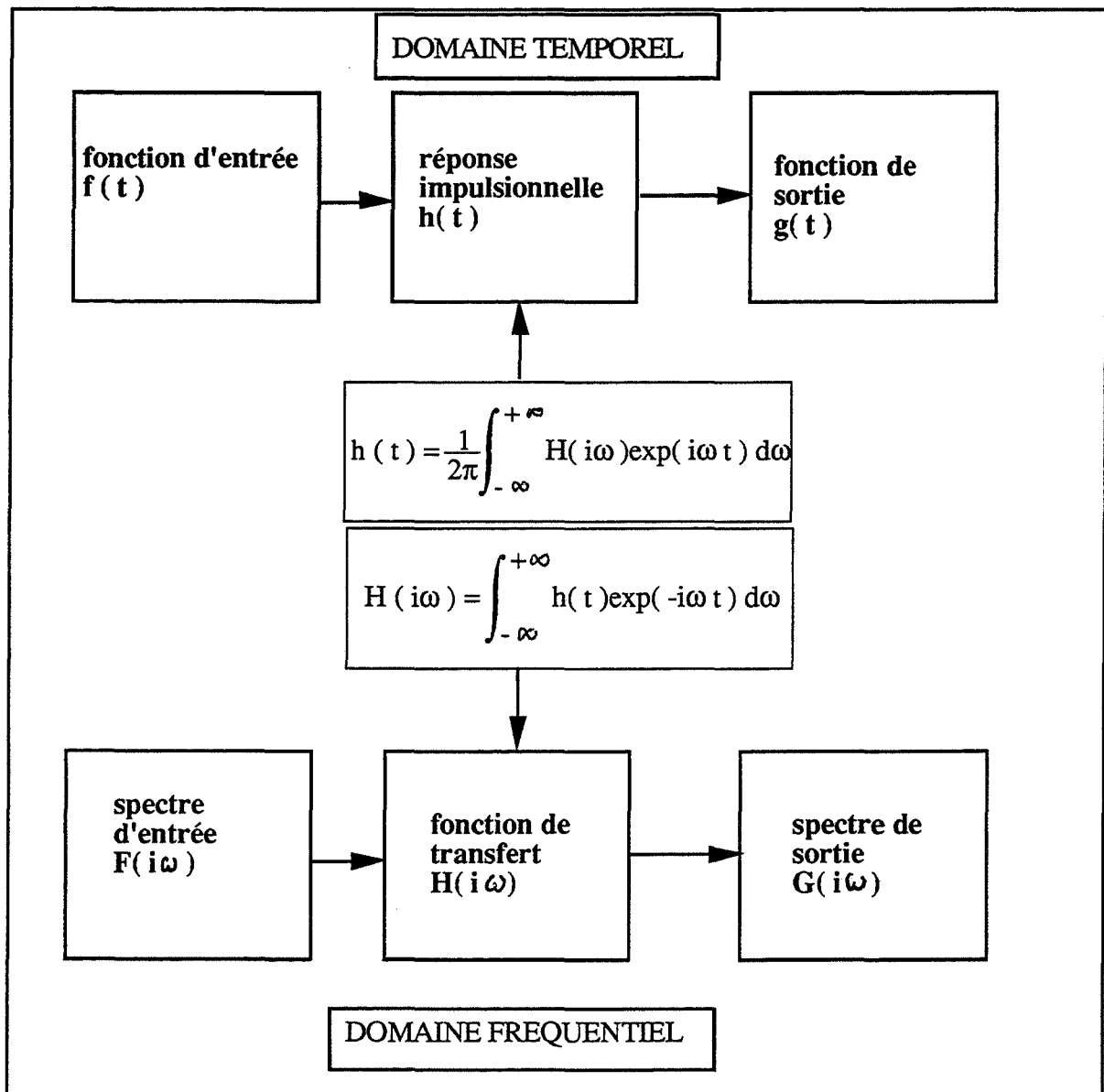


Figure III.10. Equivalence temps - fréquence.

III.2.1.1.5. Application au bois

Bucur (1984a, 1984b, 1985, 1987) et Hosten et al.(1983, 1985) ont utilisé les ultrasons pour la caractérisation des constantes élastiques du bois par mesure des vitesses. Pour des ondes se propageant selon les axes d'orthotropie du matériau, la résolution du système aux valeurs et vecteurs propres du tenseur de Christoffel se simplifie considérablement, car le tenseur de Christoffel est alors diagonal. On obtient alors pour les composantes diagonales réelles du tenseur des rigidités dans les axes 1,2,3 (L, R, T) en utilisant la notation matricielle de Voigt:

Propagation selon l'axe L (1)

$$\begin{array}{ll}
 C_{11} - \rho v^2 = 0 & v = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe L (onde longitudinale)} \\
 (6) \Leftrightarrow C_{66} - \rho v^2 = 0 & \text{d'où } v = \sqrt{\frac{C_{66}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe T (onde transversale)} \\
 C_{55} - \rho v^2 = 0 & v = \sqrt{\frac{C_{55}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe R (onde transversale)}
 \end{array}$$

Propagation selon l'axe R (2)

$$\begin{array}{ll}
 C_{66} - \rho v^2 = 0 & v = \sqrt{\frac{C_{66}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe L (onde transversale)} \\
 C_{22} - \rho v^2 = 0 & \text{d'où } v = \sqrt{\frac{C_{22}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe T (onde longitudinale)} \\
 C_{44} - \rho v^2 = 0 & v = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe R (onde transversale)}
 \end{array}$$

Propagation selon l'axe T (3)

$$\begin{array}{ll}
 C_{55} - \rho v^2 = 0 & v = \sqrt{\frac{C_{55}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe L (onde transversale)} \\
 C_{44} - \rho v^2 = 0 & \text{d'où } v = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe T (onde transversale)} \\
 C_{33} - \rho v^2 = 0 & v = \sqrt{\frac{C_{33}}{\rho}} \quad \text{polarisation axe R (onde longitudinale)}
 \end{array}$$

On peut donc résumer dans le tableau III.4. les résultats pour les différentes ondes et les différentes directions de propagation:

ONDE	Direction de propagation	Direction de polarisation	Mesure de la vitesse	Calcul de la rigidité
LONGITUDINALE	L	L	V_{LL}	C_{LL}
	R	R	V_{RR}	C_{RR}
	T	T	V_{TT}	C_{TT}
TRANSVERSALE	L	R	V_{LR}	G_{LR}
	L	T	V_{LT}	G_{LT}
	R	T	V_{RT}	G_{RT}
	R	L	V_{RL}	G_{RL}
	T	L	V_{TL}	G_{TL}
	T	R	V_{TR}	G_{TR}

Tableau III.3. Relations entre vitesses et rigidités selon les directions d'anisotropie

Les hypothèses faites pour le calcul sont bien sûr très simplificatrices. Le milieu de propagation considéré n'est ni illimité, ni homogène et si ses propriétés varient brusquement à l'échelle de la longueur d'onde, il y aura réflexion totale ou partielle de l'onde. On aura alors des phénomènes de dispersion liés à la géométrie des diffuseurs (ici, les cellules) et aux propriétés viscoélastiques de la matrice de lignine / hémicelluloses.

La dispersion géométrique dépendra de la taille des cellules, de leur défauts d'alignement ainsi que des dimensions transversales des fibres non négligeables par rapport à leur longueur, et leur répartition spatiale dans une couche annuelle (Bucur et Perrin, 1988). Si les ondes se propagent dans le sens des fibres, ces dernières constituent un guide d'onde, au contraire, si elles se propagent normalement aux fibres, celles-ci sont le siège de réflexions et de réfractions, en particulier dans les bois où bois initial et bois final sont très différents et peuvent être considérés comme les deux phases d'un stratifié (ex: pin, épicéa). D'autre part, la courbure des cernes peut jouer le rôle de lentille comme en optique.

L'étude de la vitesse de groupe $v_g = d\omega/dk$ peut nous renseigner sur les caractéristiques de structure de notre échantillon ainsi que sur les effets viscoélastiques engendrés par la matrice ligneuse. Cependant, les effets de la dispersion géométrique (décroissance de l'atténuation avec la fréquence) vont en sens inverse de la dispersion viscoélastique et la séparation des deux phénomènes est délicate à mettre en équations, d'autant plus qu'y intervient l'adhérence interfaciale de la cellule et de la matrice amorphe.

III.2.2. Dispositif expérimental

En raison de la forte atténuation du matériau, surtout dans les directions radiales et tangentiels, nous avons choisi de travailler avec une méthode par transmission pour la mesure des vitesses et des atténuations ultrasonores. Les ondes mécaniques ne sont pas directement générées et reçues. C'est par l'intermédiaire de transducteurs piézoélectriques qu'une onde ultrasonore peut être injectée dans le matériau et analysée ensuite par conversion en un signal électrique.

III.2.2.1 Description du montage expérimental

L'impulsion ultrasonore est générée par un générateur d'impulsion Sofranel 5052UA, elle excite un transducteur vibrant sur sa fréquence de résonance qui transmet au matériau une impulsion mécanique. Le signal transmis est récupéré par un transducteur identique qui reconvertit le signal mécanique en signal électrique, analysé sur un oscilloscope numérique dual LECROY 9410 (bande passante 150 MHz). Le signal est également envoyé sur un analyseur de spectre analogique HP3485 (bande passante 20 Hz-40 MHz) dont la résolution en fréquence est supérieure à l'oscilloscope Lecroy 9410, mais qui analyse en totalité le signal (alors que sur l'oscilloscope, il est possible de ne traiter que des parties du signal).

Nous disposons de plusieurs paires de transducteurs Panametrics, générant soit des ondes longitudinales, soit des ondes transversales, de fréquence de résonance donnée par le constructeur, 1 MHz (\varnothing 14 mm), 5 MHz (\varnothing 14 mm), 5 MHz (\varnothing 7 mm). Les essais de Kamioka (1988) ont montré que la mesure de l'atténuation dans le bois dans les trois directions dépendait de la pression qui lui était exercée jusqu'à 0,3 MPa et qu'après, elle était constante. Par conséquent, nous avons conçu un porte-échantillons où l'échantillon est maintenu par des ressorts lui appliquant une charge assurant la constance de l'atténuation.

Afin de minimiser la rupture d'impédance entre la surface des transducteurs et l'échantillon et d'améliorer la transmission, un gel couplant est interposé entre l'échantillon et le transducteur. Dans le cas du bois, afin que ce gel ne diffuse pas dans l'échantillon, les faces de l'échantillons sont recouvertes d'un ruban adhésif. La résolution est améliorée d'environ 3 dB, car le film plastique diminue la rugosité de la surface et assure une meilleure répartition de l'épaisseur du couplant, tout en ne modifiant pas le spectre fréquentiel.

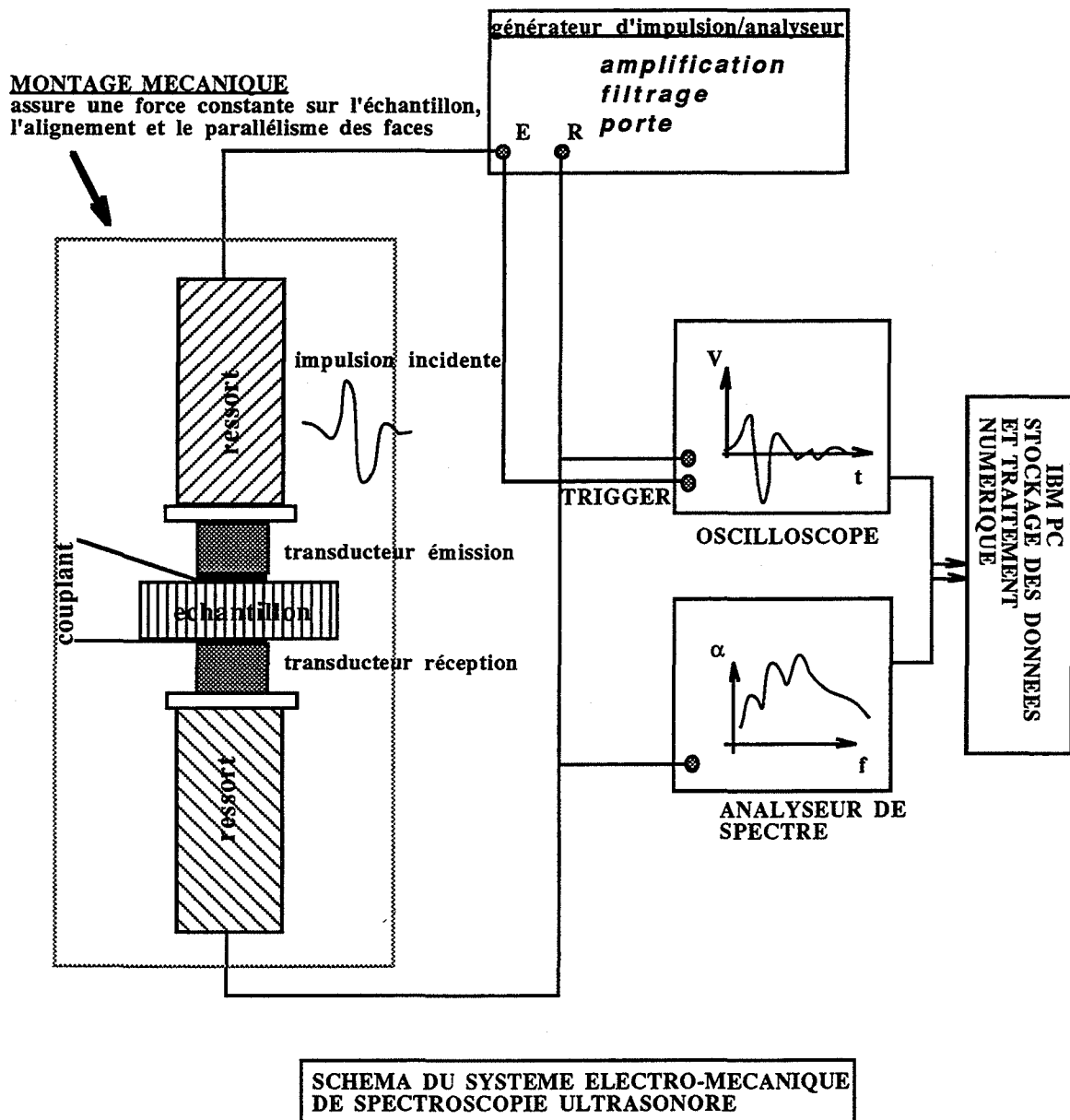


Figure III.11. Schéma du système électro-mécanique de spectroscopie ultrasonore

Mesures de la vitesse et de l'atténuation

Nous avons utilisé comme signal de référence celui obtenu avec les transducteurs en contact. Pour éviter de saturer le signal, nous avons été obligés dans ce cas d'utiliser l'atténuation maximale du récepteur, soit 68 dB.

* Vitesse

Nous avons résumé dans le schéma suivant le principe de calcul de la vitesse et de l'atténuation d'amplitude à partir de la mesure de la position du pic maximum d'impulsion.

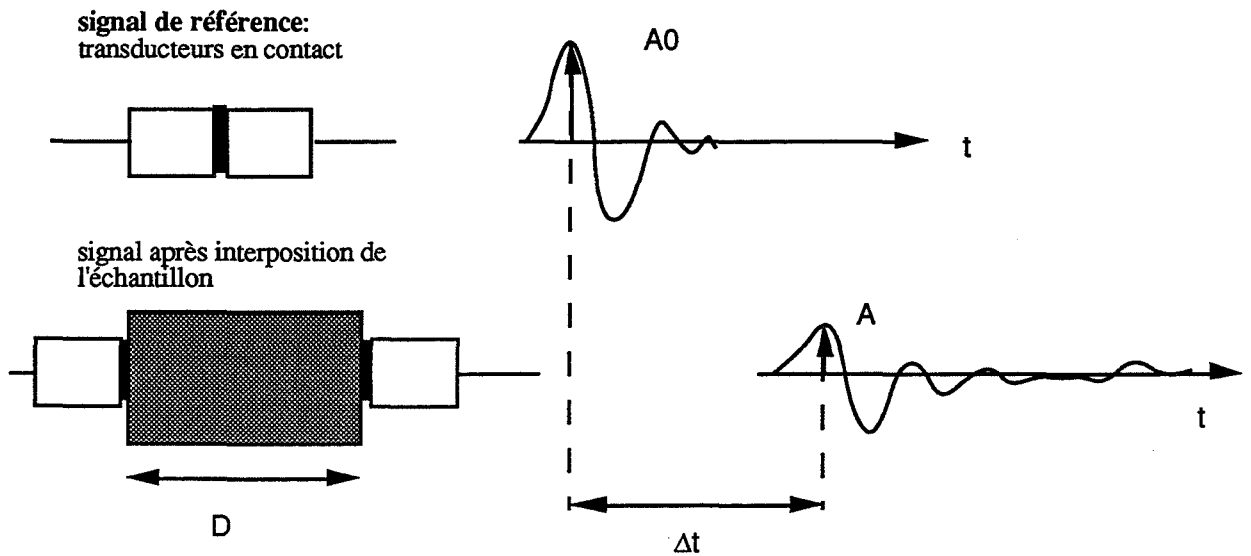


Figure III.12. Détermination de la vitesse

La vitesse est calculée à partir de la mesure du temps de parcours Δt (précision $0,01 \mu s$) et de l'épaisseur de l'échantillon (précision $0,01 \text{ mm}$). Soit pour une distance de 60 mm et un temps de parcours de $10 \mu s$, une incertitude relative $\frac{\Delta V}{V}$ de 1% .

Cependant, il faut mentionner la difficulté de déterminer avec précision l'instant de la première arrivée de l'onde en milieu atténuant. Cette remarque est surtout valable pour les ondes longitudinales dans les directions R et T et les ondes transversales, où la "forêt de pics" du signal reflète des phénomènes importants de couplage et de conversion de mode. La précision sur la vitesse pourrait être améliorée par un traitement des signaux qui sélectionnerait la partie du signal correspondant à l'impulsion transmise, et qui l'intercorrélait avec le signal de référence.

*Amplitude

* Calcul à partir de l'amplitude du signal temporel

L'amplitude est calculée par la formule :

$$A_c = 20 \text{Log} \left(\frac{A}{A_0} \right) + (G_e - G_t)$$

où les quantités G_e et G_t représentent les atténuations du récepteur pour visualiser au mieux le signal avec échantillon et le signal des transducteurs seuls.

* Mesure par analyse spectrale* Analyseur de spectre HP3485

Pour chaque essai, le spectre en fréquence sur la bande 0-2 MHz a été acquis et stocké. Nous avons ensuite calculé sur ces spectres leur fréquence centrale et le maximum d'atténuation correspondant.

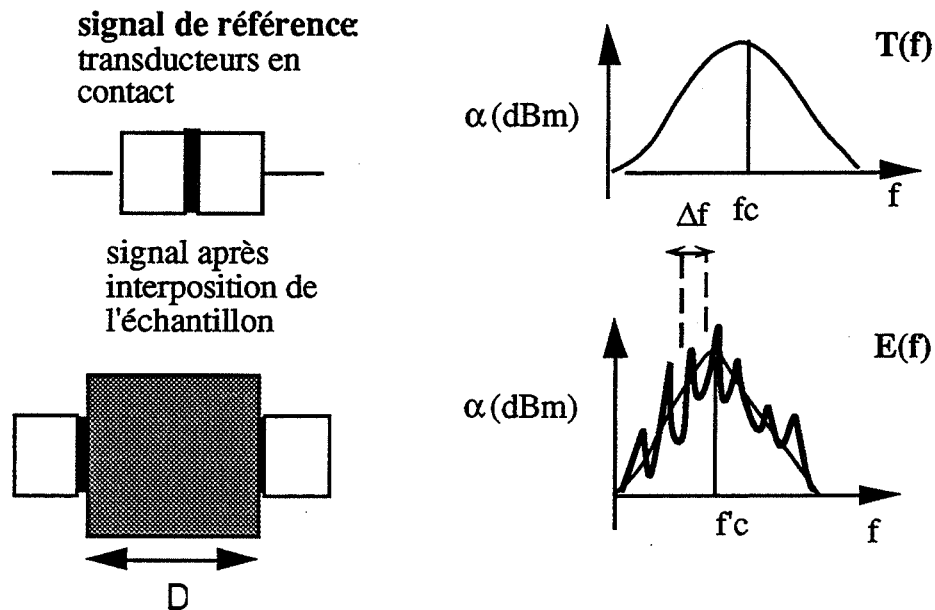


Figure III.13 . Détermination de l'amplitude maximale et de la fréquence centrale

En théorie, pour obtenir la fonction de transfert $H(f)$ de l'échantillon seul, il suffit de soustraire à la réponse en fréquence transducteurs+échantillon $E(f)$ la réponse transducteurs en contact $T(f)$.

$$\text{On a : } H(f) = E(f) - T(f).$$

En pratique, cette méthode pose quelques problèmes, car les réglages électroniques ne sont pas les mêmes dans les deux cas, et leurs réponses modifient le contenu en fréquence. Il est impossible d'avoir pour les deux cas considérés le même réglage, sinon soit on sature le signal, soit on n'amplifie pas assez et il est impossible de visualiser le signal.

* Oscilloscope LECROY 9410

Sur cet oscilloscope, la transformée de Fourier rapide (FFT) du signal est faite sur la fenêtre de visualisation. Par conséquent, nous pouvons extraire la partie du signal correspondant uniquement au signal transmis et obtenir directement le spectre déconvolué. Nous avons systématiquement mesuré l'amplitude maximale et la fréquence correspondante.

Il est beaucoup plus difficile d'estimer la précision sur la mesure de l'amplitude. Elle dépend de plusieurs facteurs difficiles à maîtriser: en premier lieu, de toute la partie électronique. Nous avons pu remarquer que changer le gain entre 0 et 68 dB changeait la forme du spectre obtenu de façon non linéaire (donc cela introduit une source supplémentaire d'erreurs dans l'étude de l'atténuation et surtout de la réponse fréquentielle). En second lieu, elle dépend de la partie mécanique: la force constante que nous appliquons sur l'échantillon devrait normalement assurer la reproductibilité des mesures, mais un problème clé est l'utilisation d'un gel pour assurer le couplage échantillon-transducteur dont nous ne contrôlons pas pour le moment son épaisseur.

Nous avons noté que la plus grande variation s'observait sur le signal transducteurs en contact: c'est pourquoi nous avons acquis un grand nombre de mesures afin de minimiser la part de variabilité qu'il entraînait par un moyennage de ces réponses. Pour déconvoluer les spectres acquis sur l'analyseur HP3485, nous avons préféré choisir comme spectre de référence le spectre obtenu pour les transducteurs se faisant face sur la longueur de l'échantillon et avec les mêmes réglages électroniques du générateur.

Malgré cela, la mesure de l'amplitude reste encore très imprécise (10-20 %, voire plus) et cette précision pourrait être améliorée par des transducteurs délivrant un signal plus stable, une électronique mieux adaptée et une connaissance plus précise des effets dus au couplant et à la force de maintien.

II.2.1.3. Essais préliminaires

II.2.1.3.1. Essais sur différents matériaux

Afin de tester notre montage et déterminer les conditions optimales de son utilisation (géométrie des échantillon, choix des transducteurs, couplage), nous avons effectué des essais préliminaires sur trois matériaux différents: duraluminium (isotrope non dispersif), PVC (isotrope dispersif) et bois de hêtre (anisotrope dispersif). Nous avons calculé la différence entre des spectres obtenus à partir d'échantillons de longueurs différentes (fig.III.14).

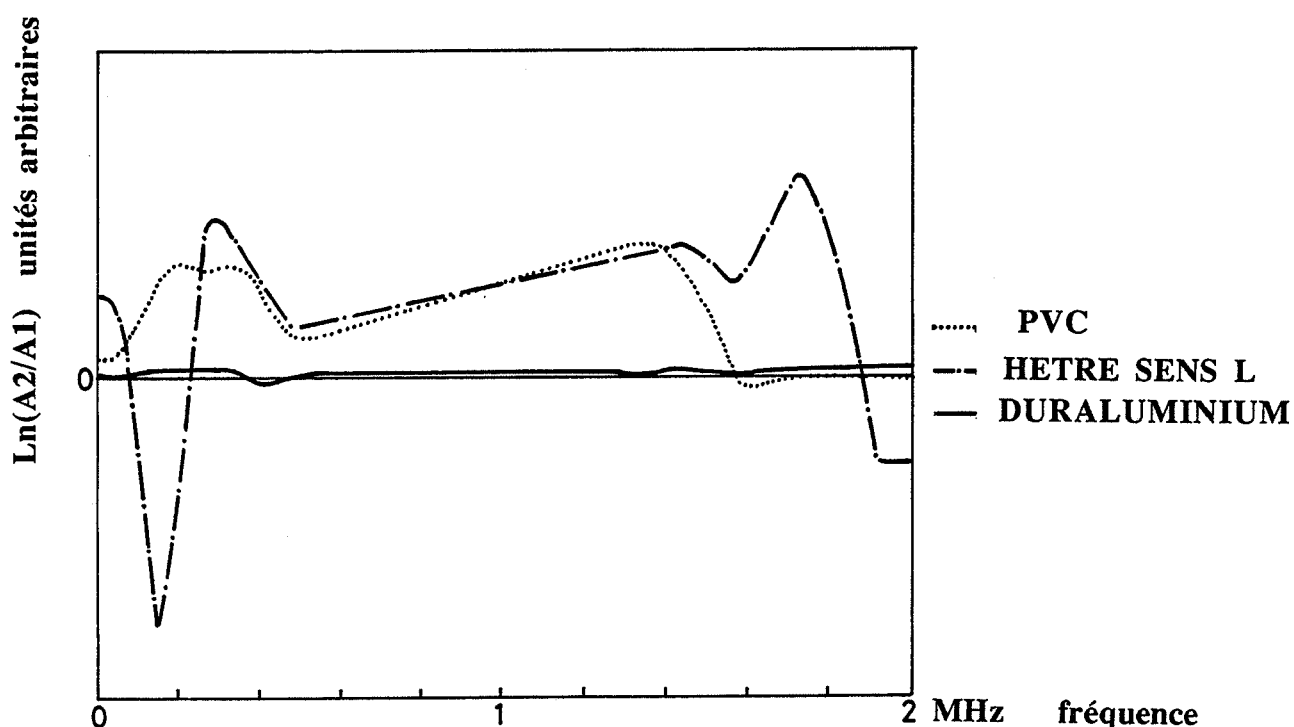


Figure III.14. Différence spectrale sur des échantillons de longueurs différentes

Le duraluminium ne présente pas de variation de l'atténuation avec la fréquence. Par contre, PVC et hêtre (direction L) présente dans la zone centrale une atténuation dépendant linéairement de la fréquence. Les valeurs obtenues sont de 3,8 dB/cm/MHz pour le hêtre dans la direction L et 1,7 dB/cm/MHz pour le PVC.

II.2.1.3.2. Essais sur des échantillons de longueurs différentes

Nous avons ensuite mesuré les vitesses et les atténuations pour des échantillons de longueurs différentes avec les transducteurs 1MHz et 5 MHz (\varnothing 14 mm) (fig.III.15 et fig.III.16). Lorsqu'on trace le temps de parcours mesuré en fonction de la longueur de l'échantillon pour les deux paires de transducteurs 1 MHz et 5 MHz, on trouve une vitesse identique pour le PVC (2309 m/s) et qui décroît légèrement pour le hêtre (5169 m/s à 1 MHz et 5024 m/s à 5 MHz), laissant penser que dans la direction L, la dispersion géométrique prédomine. La dispersion reste quand même faible et peut être négligée.

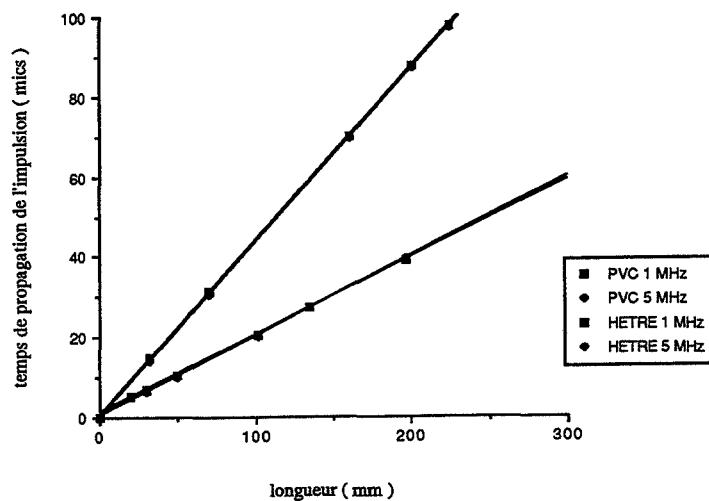


Figure III.15. Variations de la vitesse (PVC - Hêtre)

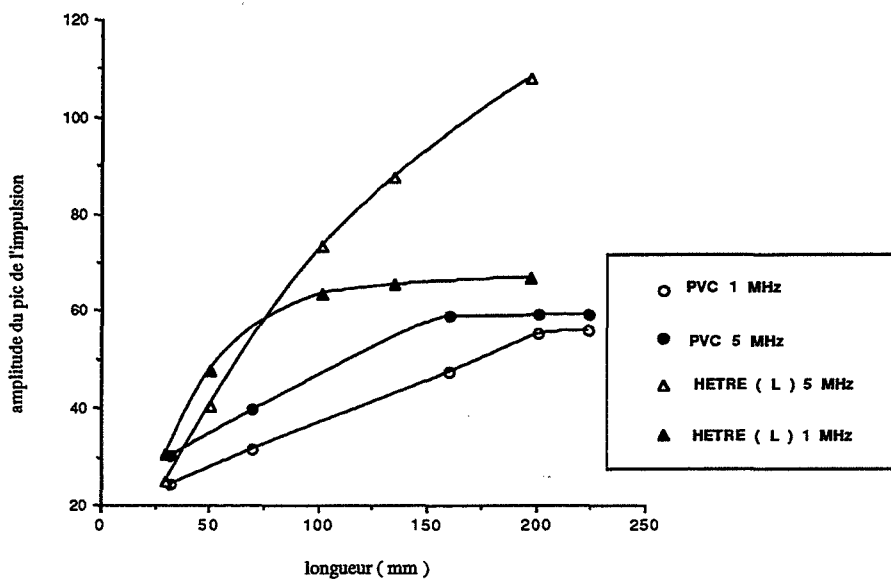


Figure III.16. Variations de l'atténuation (PVC - Hêtre)

Par contre, l'amplitude varie beaucoup avec la longueur et la fréquence. Elle est proportionnelle à la distance pour les faibles longueurs, puis elle tend vers un palier quand la longueur augmente. A ce moment, deux facteurs entrent en ligne de compte: le milieu peut être considéré comme infini et le bruit de mesure devient la seule atténuation décelable.

L'atténuation augmente avec la fréquence. Quand la longueur de l'échantillon augmente, la fréquence centrale du spectre se déplace vers les basses fréquences (fig.III.17). Nous avons constaté une corrélation linéaire (coefficient 0,707) entre l'atténuation et la fréquence centrale du spectre.

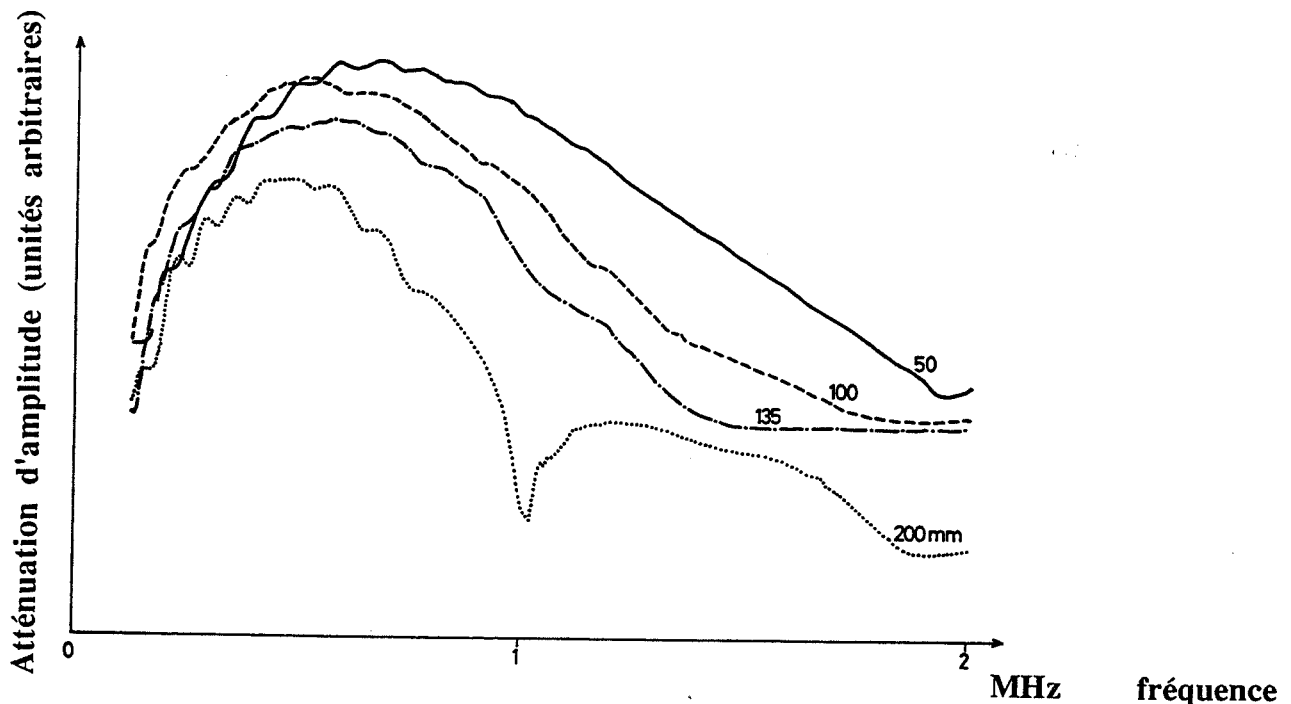


Figure III.17. Evolution de la réponse fréquentielle avec la longueur de l'échantillon

Il s'ensuit que pour avoir la meilleure résolution sur le signal, on a intérêt à choisir un échantillon de petite taille. Ceci d'autant plus que dans les directions radiales et tangentielles, la courbure des cernes est alors négligeable. La distance ne doit cependant pas être trop faible pour éviter les ondes de Rayleigh et de Lamb et les effets des réflexions parasites.

II.2.1.3.3. Influence de la fréquence

On observe un phénomène de "stop-band": au-delà d'une certaine fréquence, le signal ne se propage plus dans le matériau. Ce phénomène apparaît propre aux matériaux dispersifs puisque nous ne l'avons pas observé sur le duraluminium, mais sur le PVC et le bois dans les trois directions. Comme l'a montré la figure III.17, la fréquence de coupure dépend de la longueur de l'échantillon et est d'autant plus élevée que celle-ci est faible. Elle dépend également du

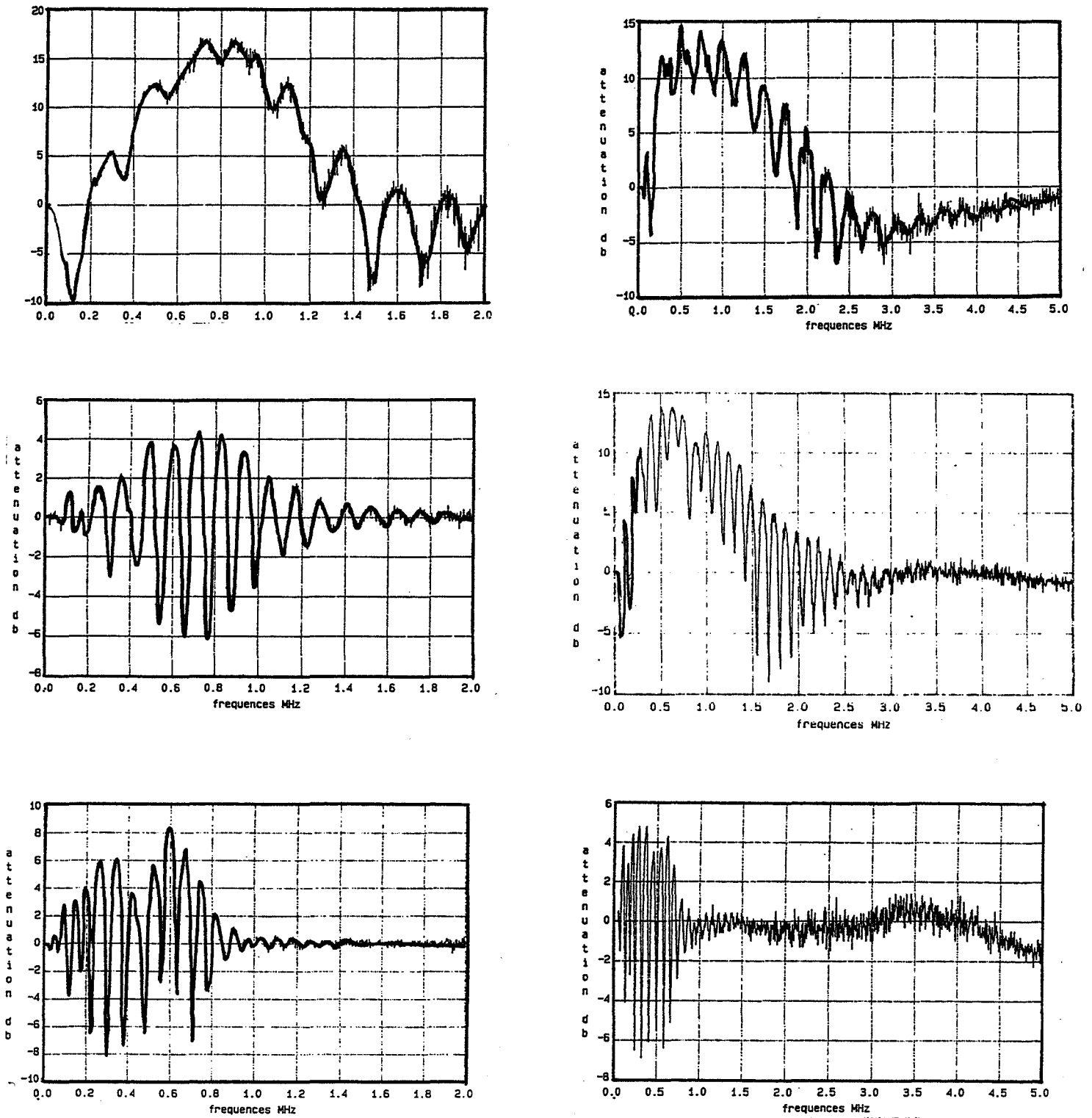


Figure III.18. Spectres analogues déconvolués (cube hêtre directions L, R, T)
 (droite) transducteurs 1 MHz, Ø 14, (gauche) transducteurs 5 Mhz Ø 7

transducteur utilisé. La figure III.18. illustre cet effet: pour un transducteur de fréquence de résonance 1 MHz et un transducteur de fréquence 5 MHz, on voit que c'est le bois qui impose la fréquence de coupure .

On voit également que le spectre en fréquence présente des oscillations. Ceci correspond à des résonances d'épaisseur (Quentin, 1987) et elles suivent la relation suivante

$$f_{n+1} - f_n = \Delta f = \frac{V}{2.D}$$

Les variations de Δf avec la fréquence permettent de remonter à la relation de dispersion (ici, de la vitesse de groupe), c'est-à-dire la dépendance de la vitesse avec la fréquence. Cette relation de dispersion reflète à la fois les phénomènes de dispersion dus à la géométrie de l'échantillon (résultant des réflexions multiples du faisceau sur les parois, l'échantillon jouant alors le rôle d'un guide d'onde) et ceux inhérents à la géométrie de la microstructure et aux propriétés viscoélastiques.

II.2.1.3.4. Influence du champ des transducteurs et de la géométrie des échantillons

II.2.1.3.4.1. Rappels sur le champ des transducteurs

La caractérisation du champ des transducteurs ultrasonores est un problème délicat auquel ont été consacrées beaucoup de recherches. On distingue généralement deux zones dans le champ d'un transducteur (fig.III.19) :

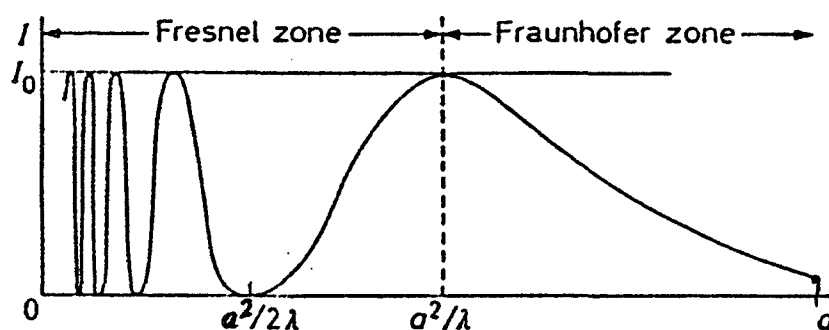


Figure III.19. Variation de l'intensité le long de l'axe pour une source circulaire vibrante comme un piston (d'après Papadakis, 1975)

La région entre la source et la position du maximum final d'intensité est la zone de Fresnel ou zone proche, tandis qu'au-delà c'est la zone de Fraunhofer ou zone lointaine. Dans la zone de

Fresnel le faisceau est parallèle et dans la zone de Fraunhofer il diverge de telle manière qu'il apparaît provenir de la source sous l'angle α tel que $\sin \alpha \approx 1,22 \frac{\lambda}{a}$, a étant le diamètre de la source. L'intensité dans la zone lointaine décroît avec le carré de la distance. L'intensité dans la zone proche passe alternativement par des maxima et des minima. La longueur de la zone proche vaut $l_0 = \frac{a^2}{4\lambda}$.

L'existence de phénomènes de diffraction apporte des difficultés dans la mesure des constantes de propagation, vitesse et atténuation. Le faisceau diffracté a déjà perdu de l'énergie par rapport au faisceau initial et cela entraîne des erreurs sur la mesure des coefficients d'atténuation. La phase est également modifiée. Les corrections à apporter à la mesure des coefficients d'atténuation ont été calculées dans le cas de matériau isotrope (fig.III.20). Leur expression dans le cas de matériaux anisotropes se compliquent sérieusement (Papadakis, 1966). Elles diminuent quand la fréquence augmente.

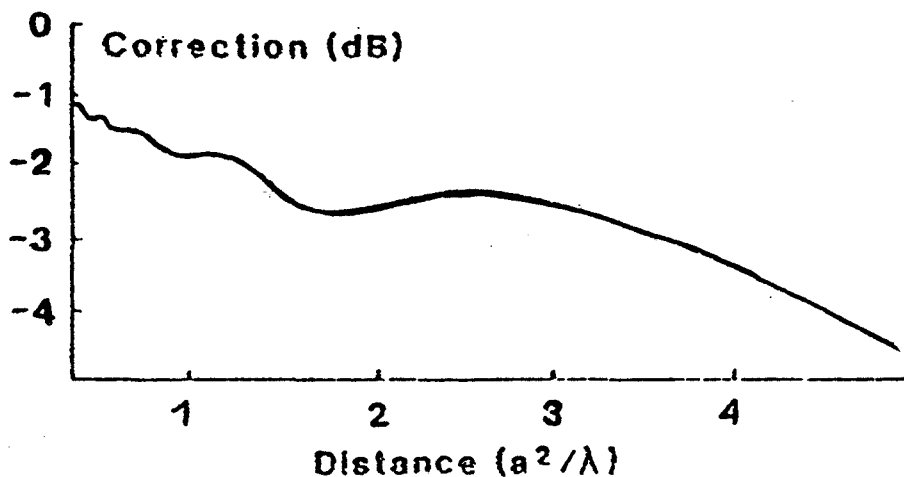


Figure III.20. Corrections de diffractions dans le cas d'un isotrope
(d'après Mason et Mc Skimin, 1948)

D'autre part, quand le faisceau diffracté est réfléchi sur les frontières latérales du milieu, ses réflexions donnent naissance à des conversions de modes qui viennent contaminer le signal étudié (fig.III.21).

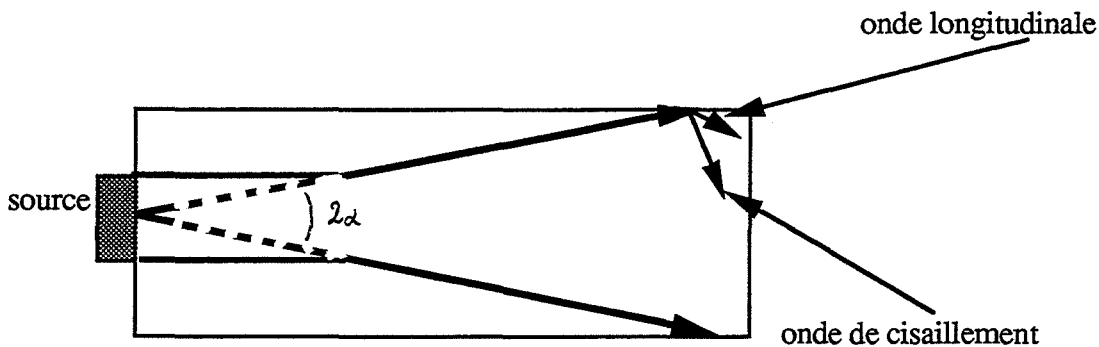


Figure III.21. Conversion de mode due à la diffraction du faisceau ultrasonore

II.2.1.3.4.2. Résultats expérimentaux

Afin d'estimer l'influence du champ des transducteurs et de la géométrie de l'échantillon, nous avons mesuré les paramètres ultrasonores pour les trois transducteurs d'ondes longitudinales: 1 Mhz, Ø 14 mm; 5 MHz, Ø 14 mm et 5 MHz, Ø 7 mm et deux géométries: cylindre et cube, de longueur 20 mm. Les résultats sont donnés dans le tableau III.4.

La géométrie cylindrique est beaucoup plus atténuante que la géométrie cubique. On peut expliquer cela par des phénomènes de conversion de mode (ondes transversales, ondes de torsion). L'apparition d'une fréquence de résonance vers 100 kHz accrédite cette hypothèse. Dans tous les cas, il apparait que le transducteur récepteur est situé dans la zone de Fraunhofer du transducteur émission, l'onde n'est donc pas plane et diverge et il faudrait corriger en conséquence la valeur de l'atténuation..

Nous retiendrons pour nos essais de caractérisation la configuration suivante: cube d'arête 20 mm (on peut alors sur un seul échantillon déterminer toutes les rigidités diagonales) et petits transducteurs de 5 MHz (la faible diamètre de ces transducteurs par rapport aux dimensions transversales de l'échantillon assure l'hypothèse de milieu infini). L'impulsion étant très courte, l'incertitude sur la mesure de la vitesse par retard est plus faible que pour les transducteurs de 1 MHz. L'examen des longueurs d'onde dans les trois directions montre que dans ce cas, elles ne sont pas négligeables par rapport aux dimensions des paramètres anatomiques, longueur de cellule et épaisseur des cernes. Nous nous trouvons donc dans un régime de diffusion stochastique où normalement, la part de l'atténuation due à la diffusion devrait augmenter avec le carré de la fréquence. Ce sont les éléments anatomiques dont la fréquence de résonance est proche de la fréquence d'excitation qui vont amplifier le signal et le propager.

HETRE	réglage att.rec.	V (m/ s)	Ac (dB)	As (dB)	fm (kHz)	λ (mm)	$\frac{a^2}{4\lambda}$ (mm)
trans. 1 MHz Ø 14							
cylindre							
L	0	4887	67	17	151	32	1,5
R	0	2492	62	12	79	32	1,5
T	0	1735	71	14	75	23	2
cube							
L	42	5609	24	22	705	9	5,5
R	20	2648	35	8	635	4	11
T	20	1772	48	2	584	3	16,3
trans. 5 MHz Ø 14							
cylindre							
L	0	4830	66,8	8	36	130	0,5
R	8	2194	62,1	13	71	31	1,5
T	0	1732	70,8	16	99	16	2,8
cube							
L	42	4816	24,4	17	372	13	3,8
R	26	2359	35,3	7	209	11	4,5
T	20	1619	47,9	3	111	14	3,5
trans. 5 MHz Ø 7							
cylindre							
L	10	4734	53	16	195	24	0,5
R	0	2151	64	13	254	9	1,5
T	0	1576	63	13	159	8	1,5
cube							
L	40	4305	27	36	608	7	1,8
R	20	2196	40	26	591	4	3,3
T	10	1609	57	36	217	7	4,5

Tableau III.4. Paramètres ultrasonores en fonction des transducteurs et de la géométrie

II.2.1.3.5. Répétabilité des mesures

Afin d'estimer la dispersion sur les mesures due au montage et à l'électronique du système, nous avons effectué 10 mesures sur le même échantillon. Nous avons testé de cette façon un cube de PVC et un cube de hêtre dans les trois directions pour les ondes longitudinales délivrées par le transducteur 5 MHz de petit diamètre (Tab.III.5).

échantillon	réglage att.récepteur		Vitesse (m/ s)	Ac (dB)	As (dB)	fm (kHz)
CUBE PVC	40	moyenne	2294	24,9	28,6	1358
		coef.var.(%)	1,5	2,8	2,5	4,3
CUBE HETRE L	40	moyenne	4305	27,1	23,3	608
		coef.var.(%)	0,8	3,0	2,9	1,1
CUBE HETRE R	20	moyenne	2196	40,4	12,7	591
		coef.var.(%)	0,3	1,2	4,8	0,2
CUBE HETRE T	10	moyenne	1609	57,0	12,9	217
		coef.var.	0,4	14,3	14,0	2,7

Tableau III.5. Répétabilité des mesures

La dispersion sur les mesures de vitesse est très faible ($\approx 1\%$), par contre la dispersion des mesures d'atténuation est beaucoup plus importante. Etant donné le caractère anisotrope du bois, elle dépend de la direction considérée et est maximale quand l'atténuation est maximale (elle peut atteindre 14 % dans la direction tangentielle).

II.2.1.4. Mesures dans les directions d'orthotropie du bois

Nous voyons dans le tableau III.5 illustrée l'anisotropie du bois qui porte à la fois sur la vitesse et l'atténuation . Nous avons les inégalités suivantes:

$$V_L \gg V_R > V_T \text{ et inversement , } \alpha_T > \alpha_R \gg \alpha_L$$

(Remarque: α correspond à l'amplitude divisée par la distance. Comme la distance parcourue est identique pour les trois directions, le classement des amplitudes devrait correspondre au classement des atténuations. Cependant, comme les vitesses sont différentes, les longueurs d'onde sont également différentes, donc les corrections de diffraction du champ des transducteurs ne sont pas identiques dans les trois directions. Ne connaissant pas les ordres de grandeur des corrections à apporter, nous ne pouvons pas, en divisant par la distance, fournir une valeur absolue de

l'atténuation. Cependant, la relation ci-dessus peut aussi être obtenue si l'on compare les fréquences centrales qui varient comme les vitesses. Plus la fréquence centrale du spectre est basse, plus l'atténuation est élevée dans la direction considérée.)

Si l'on regarde la transformation de l'impulsion à sa traversée dans le matériau, nous observons donc que plus la direction est atténuante, plus le signal recueilli après propagation est large, donc plus sa fréquence principale diminue et moins la mesure de l'atténuation est précise (fig.III.22). Si le signal devient trop large, les réflexions multiples sur les bords de l'échantillon vont parasiter la queue du signal étudié. De plus, l'amplitude du signal devient très faible à forte atténuation et le bruit de fond de la mesure devient alors gênant.

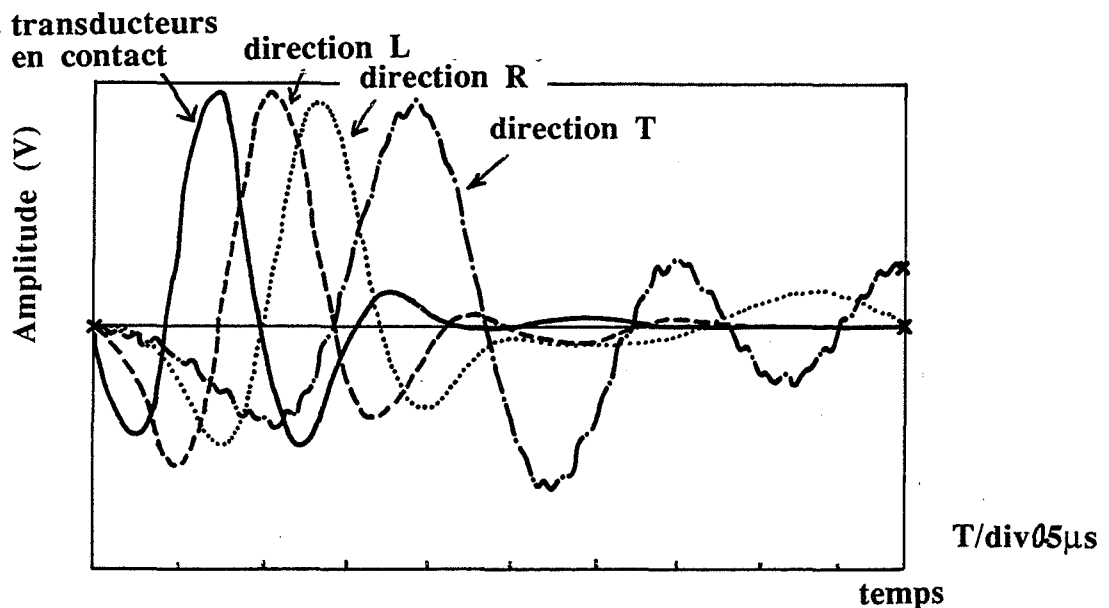


Figure III.22 Elargissement de l'impulsion dans les trois directions
- cube de hêtre 20 mm - transducteurs 1 MHz -

En étudiant les réponses des différents bois, nous avons observé que les signaux des feuillus (hêtre, peuplier) étaient moins distordus que ceux du douglas (fig.III.23). La structure anatomique des résineux est par rapport à la propagation des ondes ultrasonores plus hétérogène que celle des feuillus. Les feuillus étudiés sont des feuillus à zone poreuse diffuse et ne présentent pas de différence notable entre bois initial et bois final tandis que le douglas présente une stratification beaucoup plus marquée des cernes annuels.

PEUPLIER direction L

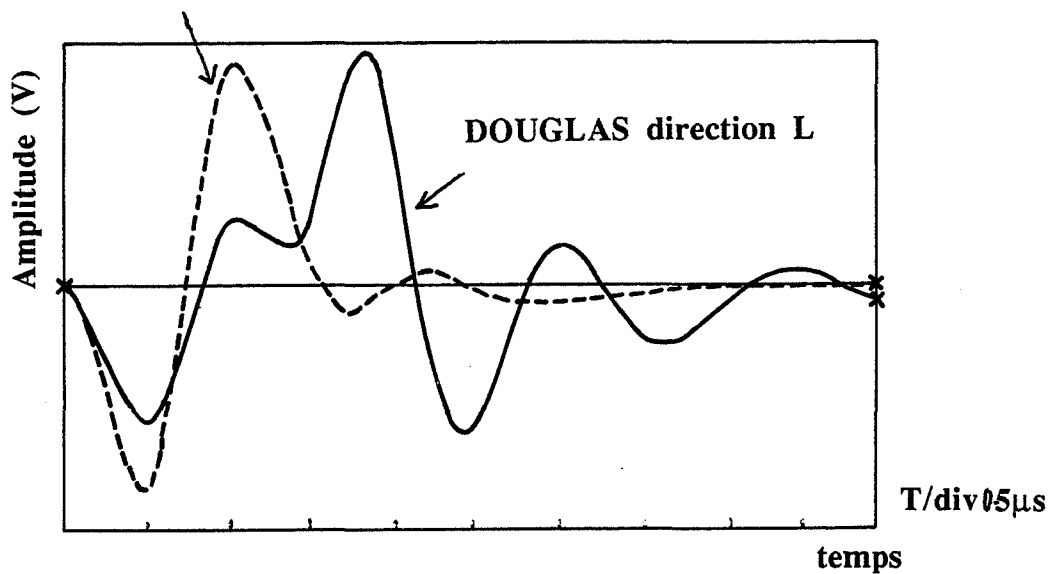


Figure III.23. Différence entre Douglas et peuplier
cube 20 mm - Transducteurs 1 MHz -

Nous présentons dans les pages suivantes les signaux temporels et les spectres en fréquence obtenus pour les deux types d'onde: longitudinales et transversales, dans les trois plans d'anisotropie pour un cube de hêtre de 20 mm (fig.III.24, fig.III.25., fig.III.26, fig.III.27.). Les réponses du peuplier et du douglas, bien que légèrement différentes présentent globalement les mêmes caractéristiques.

De façon générale, nous pouvons faire quelques commentaires sur les signaux temporels et leurs spectres en fréquence:

ONDES LONGITUDINALES

- direction L: Dans cette direction, le signal est le moins distordu. On observe une première impulsion transmise suivie d'un train d'échos. Sur le spectre en fréquence apparaissent deux pics, le premier à base fréquence (200-300 kHz) est selon nous la part des ondes transversales converties, le deuxième à 600-700 kHz correspond aux ondes longitudinales transmises

- direction R: le signal temporel est déjà plus complexe et il est difficile de distinguer les échos des ondes converties. Le spectre présente plusieurs pics à basses fréquences en plus de la composante longitudinale principale.

- direction T: la structure excitée dans le sens tangentiel renvoie un signal très perturbé, qui reflète des phénomènes importants de conversion. Le nombre de pics dans le spectre fréquentiel est élevé. L'onde analysée est en fait la recombinaison de plusieurs modes de vibrations et se rapproche des spectres des composites stratifiés (Scott et Gordon, 1977).

ONDES TRANSVERSALES

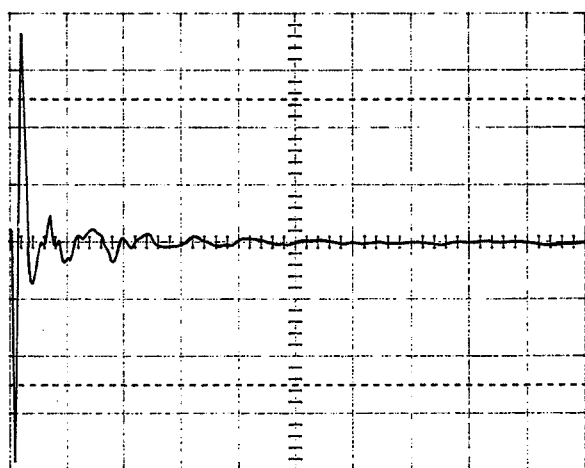
Quelle que soient la direction de polarisation et de propagation, sauf dans le cas où la direction de propagation est tangentielle et la direction de polarisation longitudinale, il apparaît une onde longitudinale convertie, précédant le signal de l'onde transversale transmise puisque sa vitesse est toujours supérieure. Quand les signaux se propagent dans la direction L, le taux de conversion est important. On distingue bien sur les spectres en fréquence deux pics: un à basse fréquence correspondant à l'onde transversale et un à plus haute fréquence correspondant à l'onde longitudinale.

Dans le plan LR, il y a peu de différence entre les deux directions et signaux en temps et en fréquence sont similaires, par contre le plan LT présente au niveau de la propagation une dissymétrie très forte entre les directions L et T. Dans le plan RT, l'onde la plus distordue et présentant un double phénomène de conversion, à la fois onde longitudinale, mais aussi ondes transversales LT et LR, s'observe pour la direction de propagation R et la direction de polarisation T. De façon générale, les fréquences centrales sont déplacées entre 150 et 300 kHz. Les atténuations se classent de la façon suivante:

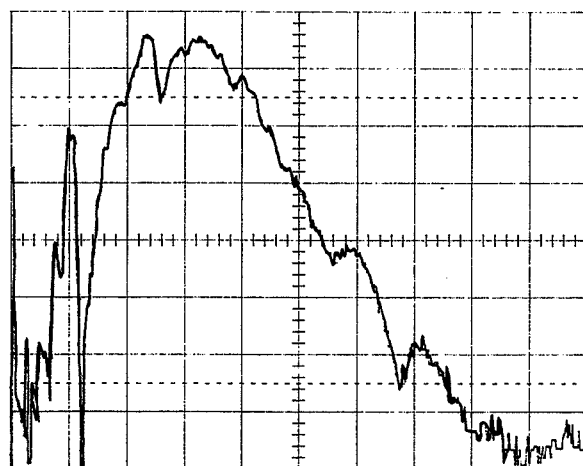
$$\alpha_{LR} = \alpha_{LT} = \alpha_{RL} > \alpha_{RT} > \alpha_{TL} > \alpha_{TR}$$

Les différentes observations ci-dessus seraient à relier de façon plus précise à la structure anatomique du bois. Cependant, sans modélisation, même simpliste de la structure, il est difficile d'interpréter les signaux en fonction des paramètres de structure.

Cependant, notre objectif est plus modeste: il s'agit de comparer les réponses acoustiques d'échantillons de bois soumis à des traitements en température. Notre méthode est donc plus "différentielle" et se préoccupe moins de valeurs absolues et de compréhension des phénomènes en jeu, mais cherche avant tout à déterminer sur des échantillons de géométries identiques et excités par la même paire de transducteurs les variations des paramètres ultrasonores et à essayer de les relier aux changements structurels induits par le traitement. La méthode ultrasonore (Böhnke et al., 1990, Böhnke et Guyonnet., 1991) s'est avérée un outil intéressant dans ce contexte.



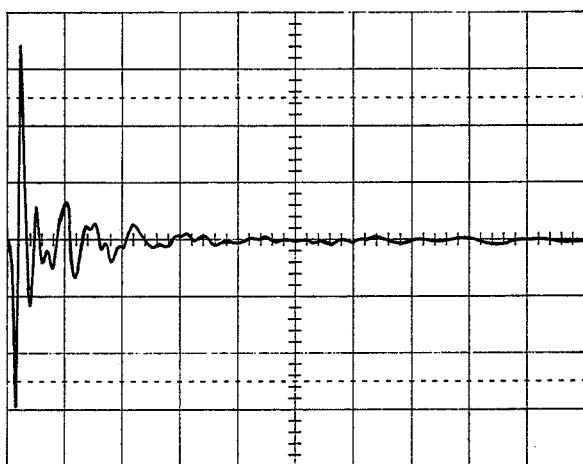
T/div 5 μ s



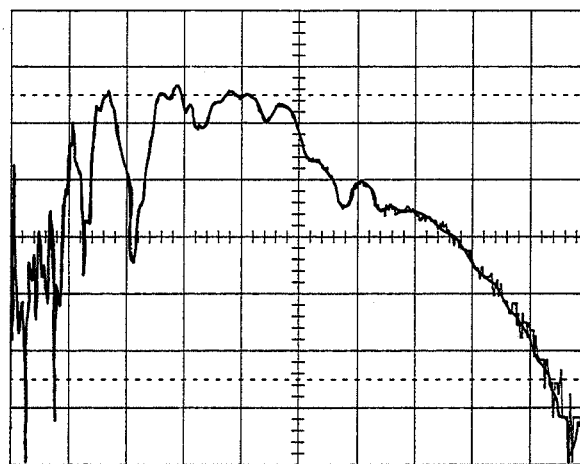
0

2 MHz

DIRECTION LONGITUDINALE



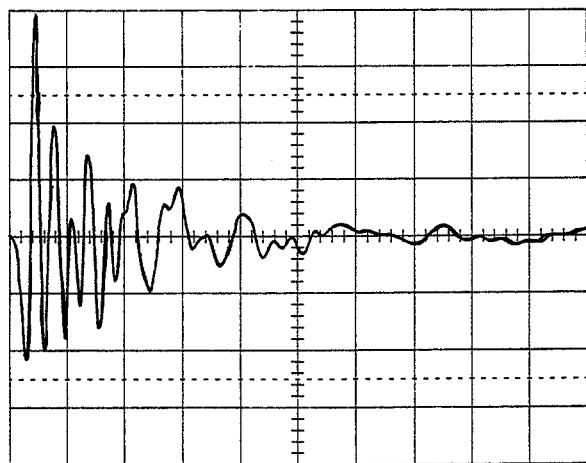
T/div 5 μ s



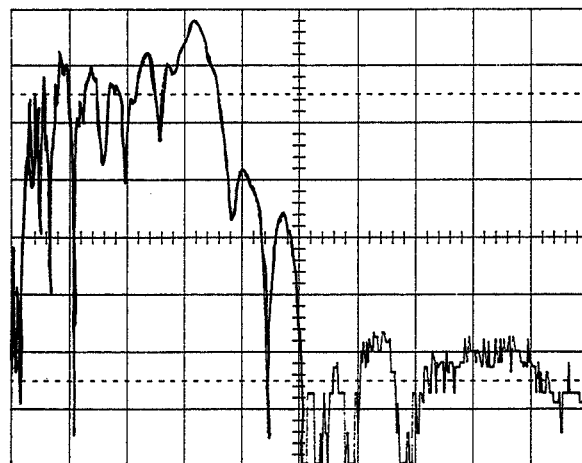
0

2 MHz

DIRECTION RADIALE



T/div 5 μ s



0

2 MHz

DIRECTION TANGENTIELLE

Figure III.24. ONDES LONGITUDINALES

Signaux temporels et spectres en fréquence

Cube hêtre 20 mm - transducteurs 5 MHz - \varnothing 7

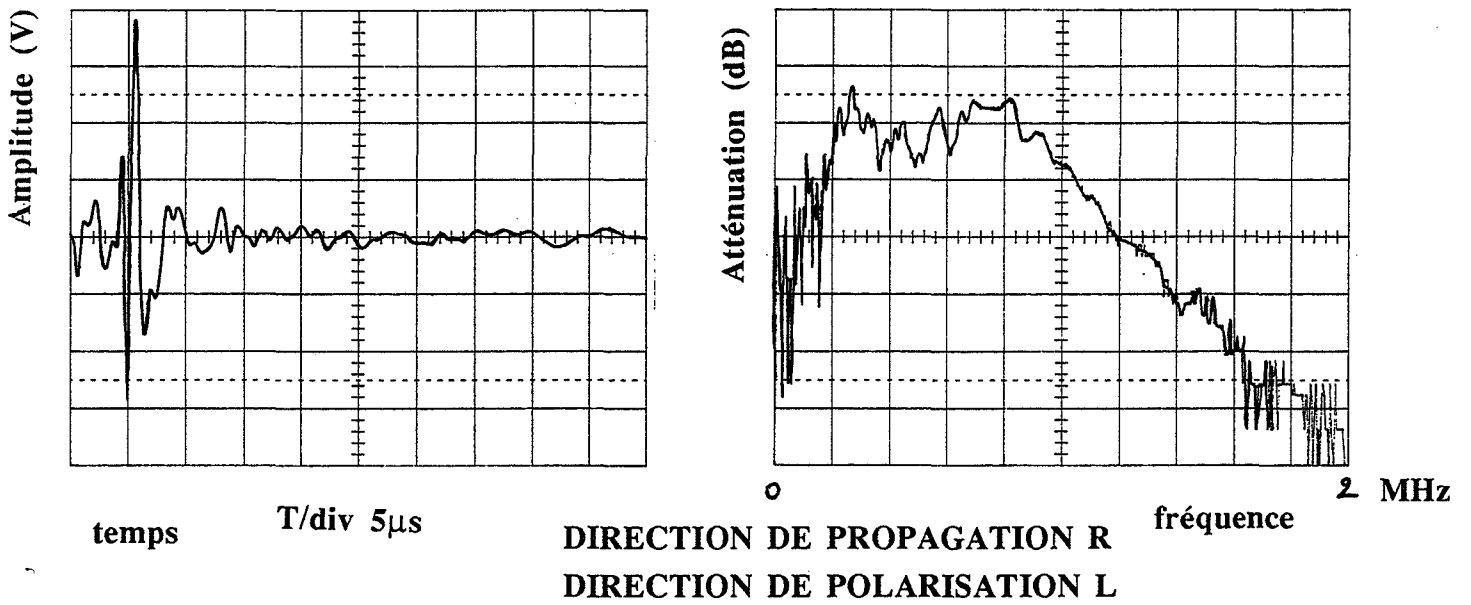
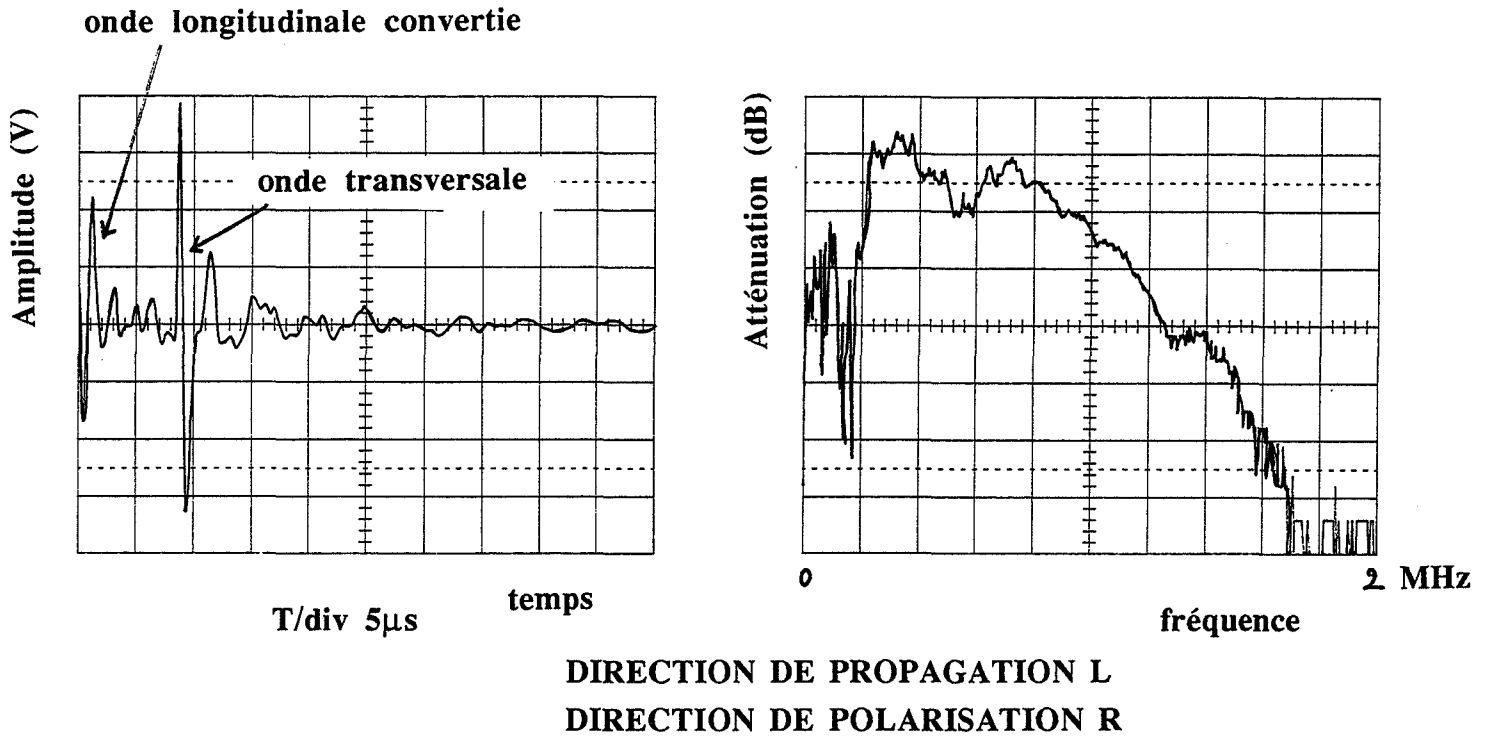
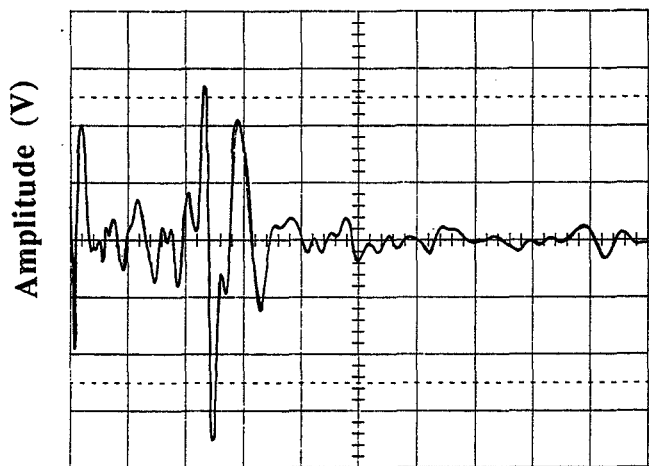
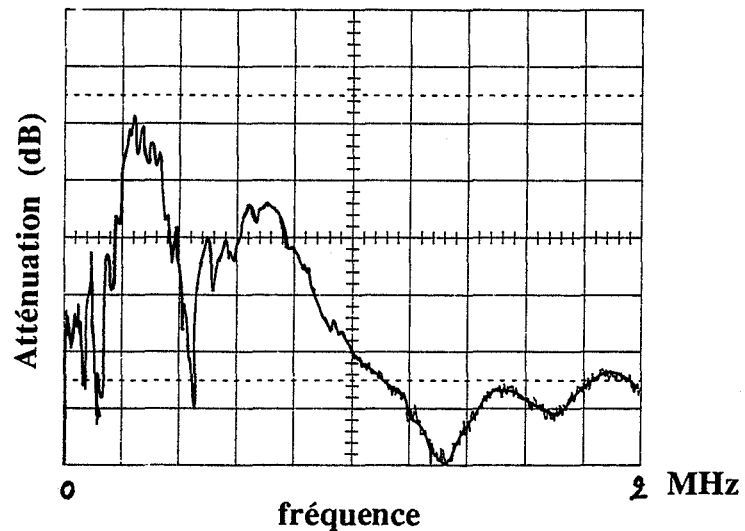


Figure III.25. ONDES TRANSVERSALES
PLAN LR

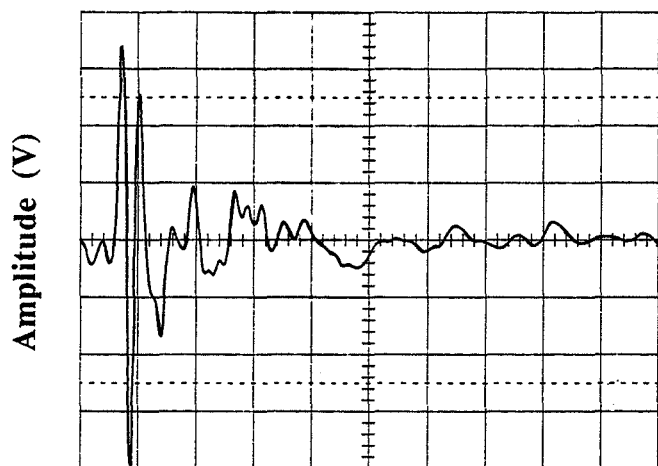


T/div 5 μ s

temps

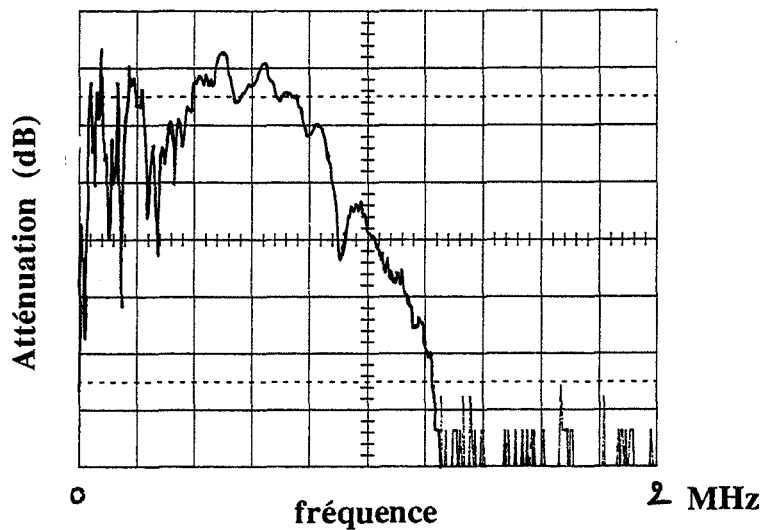


DIRECTION DE PROPAGATION L
DIRECTION DE POLARISATION T



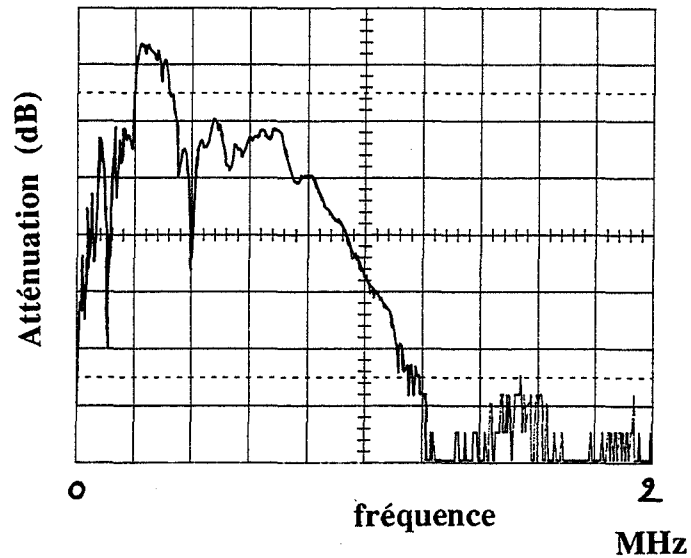
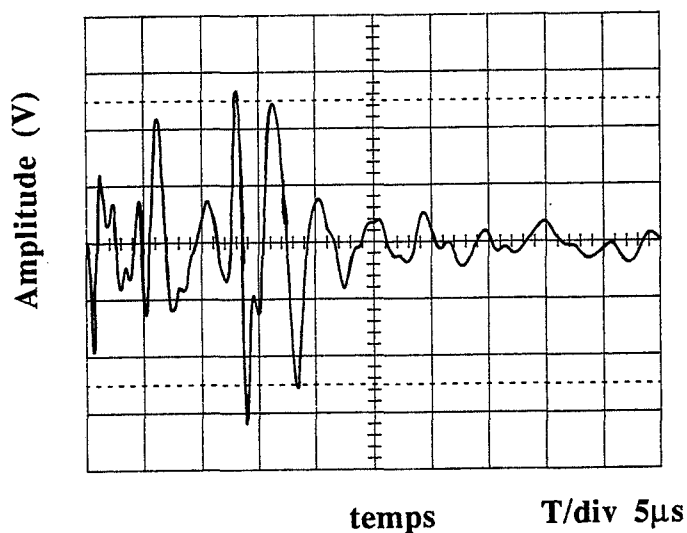
T/div 5 μ s

temps

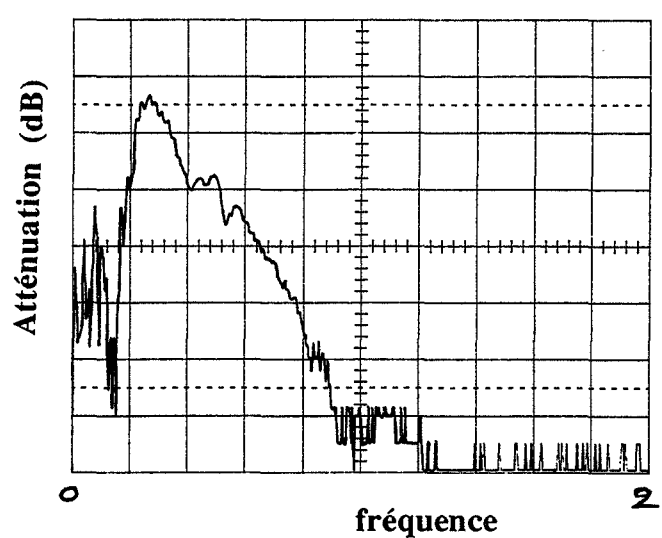
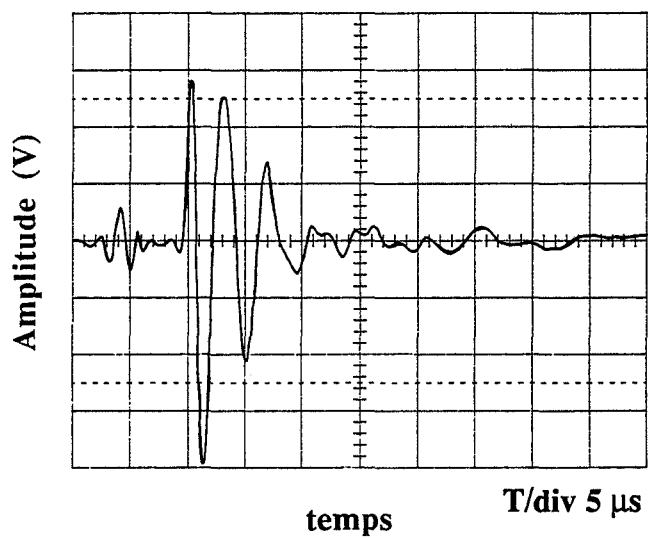


DIRECTION DE PROPAGATION T
DIRECTION DE POLARISATION L

Figure III.26 ONDES TRANSVERSALES
PLAN LT



**DIRECTION DE PROPAGATION R
DIRECTION DE POLARISATION T**



**DIRECTION DE PROPAGATION T
DIRECTION DE POLARISATION R**

**Figure III.27. ONDES TRANSVERSALES
PLAN RT**

III.2.1.5. Résultats

III.2.1.5.1. Epicéa

Les échantillons que nous avons mesurés sont des parallélépipèdes taillés dans les trois directions du bois. Ils proviennent de barreaux d'épicéa fournis par le CTBA. Chaque barreau a été découpé afin de conserver une partie témoin tandis que les autres étaient soumises à trois traitements différents: 250°C, 260°C et 270°C. Le reste a été conservé pour des mesures supplémentaires éventuelles. Les échantillons ont été finalement usinés sous leur forme finale au CTBA et ont les dimensions finales suivantes:

compression sens L : 20*20*60 mm

compression sens R : 30*30*60 mm

compression sens T : 30*30*60 mm .

Les paramètres ultrasonores ont été mesurés avec des transducteurs d'ondes longitudinales 1 MHz (\varnothing 14 mm). Nous avons utilisé comme signal de référence celui obtenu avec les transducteurs en contact. Pour éviter de saturer le signal, nous avons été obligés dans ce cas d'utiliser l'atténuation maximale du récepteur, soit 68 dB. Pour visualiser les signaux dans le sens longitudinal, ce gain était compris entre 20 et 30 dB, par contre en radial et tangentiel, il était nul.

Pour les échantillons radiaux et tangentiels, nous avons mesuré le temps de propagation et acquis les spectres dans les trois directions afin de pouvoir calculer des atténuations intrinsèques à partir de la différence d'atténuation en amplitude sur des longueurs parcourues différentes.

Les calculs des longueurs de champ proche que nous avons faits à partir de nos résultats ont donné pour l'épicéa naturel les moyennes suivantes :

$$\lambda_L = 7,32 \text{ mm} \quad \lambda_R = 5,45 \text{ mm} \quad \lambda_T = 2,86 \text{ mm}$$

$$\text{Soit} \quad l_{0L} = 5,8 \text{ mm} \quad l_{0R} = 7,8 \text{ mm} \quad l_{0T} = 14,8 \text{ mm} .$$

Dans tous les cas, nous voyons que la longueur des échantillons est largement supérieure à cette longueur et que nous nous trouvons toujours dans la zone dite de Fraunhofer. Il faut donc être prudent lorsqu'on mesure des atténuations à des longueurs différentes.

Par contre, si les distances sont identiques, il est tout à fait possible de comparer les valeurs des amplitudes divisées par la longueur parcourue, mais elles ne seront pas absolues. Les résultats sur l'atténuation que nous donnons dans la suite n'ont pas encore été corrigés et il ne faut donc pas les considérer comme des valeurs absolues, mais comme des indicateurs de tendances.

Nous avons résumé dans le tableau III.6. les résultats pour les différentes directions concernant la vitesse et l'atténuation mesurées sur le signal temporel .

ECHANTILLON		NATUREL			250°C			260°C			270°C		
		SR	ST	SL	SR	ST	SL	SR	ST	SL	SR	ST	SL
COMPRESSION RADIALE	A (dBm)	72,7	79,6	48,3	85,6	70,2	42,4	79,5	70	45,2	84,7	73	47,8
	V(m/s)	1588	1497	6323	1829	1520	6382	1753	1512	6109	1538	1241	6415
COMPRESSION TANGENTIELLE	A (dBm)	68,7	86,8	58,8	65,4	83	54,3	69,5	89,4	55,1	71,2	93,9	52
	V(m/s)	2042	969	5758	1900	1062	5861	2078	936	5896	1985	894	5648
COMPRESSION LONGITUDINALE	A (dBm)	*****	*****	55,5	*****	*****	55,1	*****	*****	46,4	*****	*****	49,2
	V (m/s)	*****	*****	6209	*****	*****	6144	*****	*****	6160	*****	*****	6208

Tableau III.6. Paramètres ultrasonores mesurés dans les différentes directions- EPICEA

SERIE	paramètres stat.	perte de masse (%)	densité (kg/m ³)	vitesse (m/s)	Ac (dBm)	Am (dBm)	f _m (kHz)
NATUREL	minimum	0	345	5512	31,7	22,5	628
	maximum	0	600	6694	81,2	69,7	980
	moyenne	0	493	6209	55,5	47	854
	moyenne quadrat.	0	497	6216	56,3	47,9	857
	écart-type	0	56	282	9,1	8,9	67
	déviatiion moyenne	0	44	232	6,5	6,8	48
	erreur type	0	7	36	1,1	1,1	8
	coef. de variation	0	11	4	16	19	8
250°C	minimum	2,23	314	5069	38,9	23,5	658
	maximum	7,14	569	7302	74,4	48,2	934
	moyenne	4,41	472	6144	55,1	39,3	837
	moyenne quadrat.	4,55	475	6159	55,7	39,7	839
	écart-type	1,14	59	430	8,3	5,9	44
	déviatiion moyenne	0,9	46	300	6,4	4,9	26
	erreur type	0,15	7	55	1,1	0,7	6
	coef. de variation(%)	26	12	7	15	15	5
260°C	minimum	0	307	5580	33,1	22,2	504
	maximum	11,3	564	6501	57	62,4	1054
	moyenne	9,1	464	6160	46,4	34,2	827
	moyenne quadrat.	9,23	468	6164	46,7	34,7	831
	écart-type	1,57	57	225	5,4	6,1	79
	déviatiion moyenne	0,98	45	184	4,5	3,5	48
	erreur type	0,2	7	28	0,7	0,8	10
	coef. de variation	17	12	4	12	18	10
270°C	minimum	8,06	283	5073	42,3	44,6	688
	maximum	14,65	670	6862	71,5	54	952
	moyenne	12,16	459	6208	49,2	49,1	841
	moyenne quadrat.	12,23	464	6216	49,6	49,2	843
	écart-type	1,53	66	325	6	2,7	69
	déviatiion moyenne	1,22	49	247	4,7	2,4	50
	erreur type	0,19	8	41	0,7	0,3	12
	coef. de variation	13	14	5	12	5	8

Tableau III.7. Paramètres ultrasonores - étude statistique sur les échantillons longitudinaux de compression - EPICEA

Nous pouvons déjà remarquer que les valeurs des vitesses sont différentes selon l'épaisseur parcourue et l'axe principal de l'échantillon. Ainsi, V_L est maximale (6323 m/s) lorsqu'elle est mesurée sur les 30 mm de l'échantillon radial, par contre dans le cas de l'échantillon tangentiel, elle tombe à 5758 m/s. Nous pouvons faire les mêmes observations sur les vitesses radiales et tangentielles.

Nous expliquons ces écarts entre les vitesses mesurées dans les différentes directions par des phénomènes de conversion de mode et de guidage d'ondes. L'onde analysée en sortie n'est pas une onde pure: si au départ, l'onde pulsée est longitudinale, au cours de la traversée de l'échantillon, elle va rencontrer des surfaces avec rupture brusque d'impédance et des variations de densité. Les vitesses mesurées sur le pic maximum sont donc des vitesses intermédiaires, mélange entre les vitesses de différents types d'onde excitées et transmises qui se recomposent au niveau du récepteur. Ces différents modes, de vitesse souvent proches, ne sont pas clairement séparés.

Le faible nombre d'échantillons dans les directions radiales et tangentielles ne nous a pas permis de faire une réelle étude statistique, par contre dans la direction longitudinale, nous disposons de 62 échantillons par état, ce qui nous a permis de faire déjà une approche statistique des paramètres mesurés. Les résultats sont donnés dans le tableau III.7.

Quand on trace la rigidité longitudinale et la tangente de l'angle de perte (calculée par $\text{tg}(\delta/2) = \frac{\alpha V}{\pi f}$) en fonction de la perte de masse sèche et qu'on lisse les courbes (facteur de lissage: 30 %),

on observe à nouveau deux maxima pour la rigidité, respectivement à 2,8 % et 9,4 % et un minima à 5,7 %. La tangente de l'angle de perte suit une évolution inverse. Sa valeur n'est pas absolue et supérieure à la valeur réelle, car l'atténuation mesurée est supérieure à l'atténuation intrinsèque du matériau. Elle comprend les effets de diffraction du faisceau, de la rupture d'impédance à la surface du transducteurs et des conversions de mode. Cependant, ces effets étant purement géométriques, on peut les supposer constants pour une géométrie et une paire de transducteurs donnés et n'influent pas sur ses variations relatives.

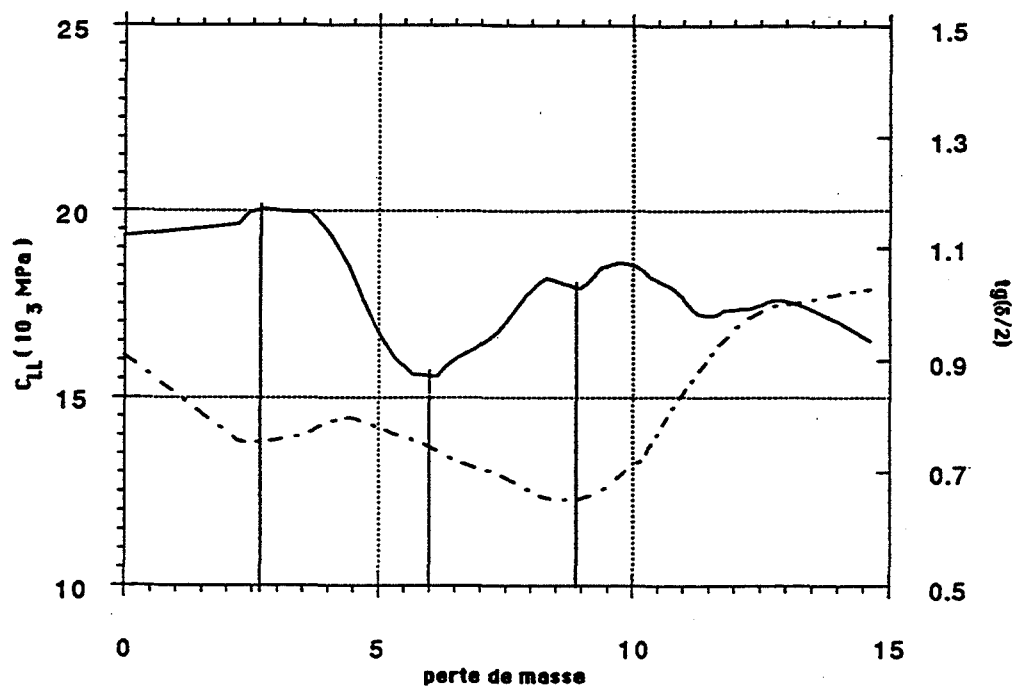


Figure III.28. Evolution de la rigidité et de la tangente de l'angle de perte en fonction du traitement dans la direction longitudinale

Les mesures dans les autres directions montrent que le module radial (fig.III.29) semble peu affecté par le traitement tandis que le module tangentiel (fig.III.30) diminue beaucoup. La chute du module tangentiel peut s'expliquer par le fait que le traitement en détruisant les hémicelluloses détruit principalement l'adhérence fibres-matrice amorphe. Cet effet se traduit principalement sur le module tangentiel sans affecter notablement les autres directions.

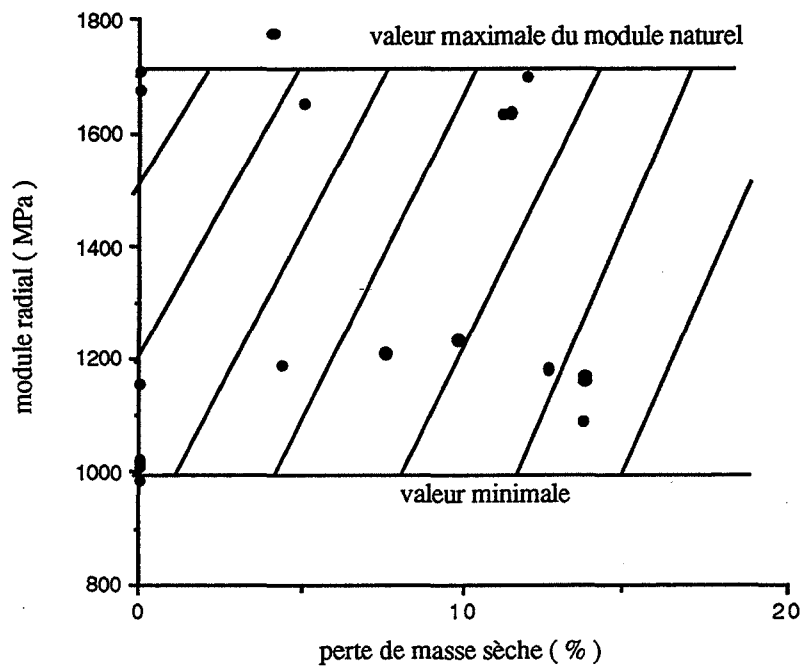


Figure III.29. Evolution du module radial avec la perte de masse

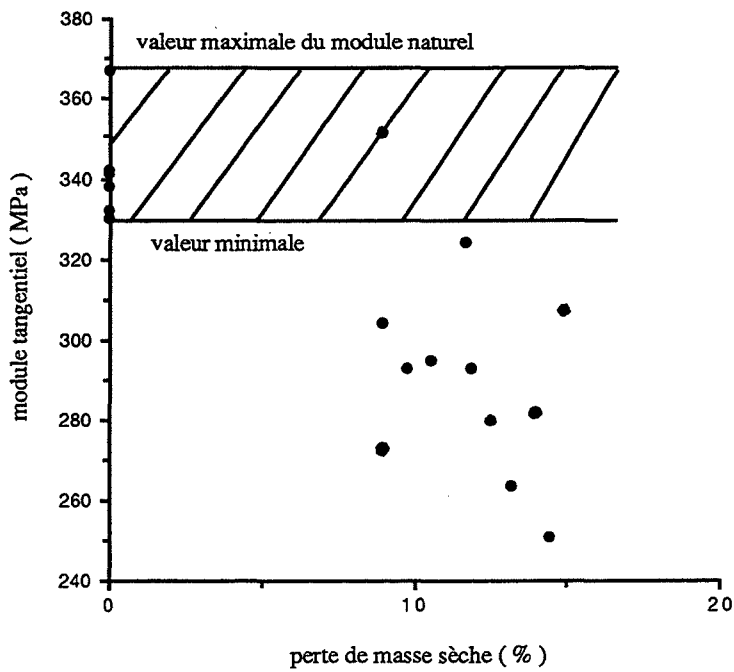


Figure III.30 Evolution du module tangentiel avec la perte de masse

III.2.1.5.2. Essais sur des différentes essences

III.2.1.5.2.1. Résultats des mesures

Les vitesses et les atténuations des ondes longitudinales et transversales se propageant dans les trois plans d'orthotropie LR, LT et RT ont été mesurées avec les transducteurs 5 MHz (Ø 7 mm) pour les trois essences et les différents traitements sur quatre cubes d'arête 20 mm et également avec les transducteurs 1 MHz (Ø 14 mm) pour le hêtre. Afin de ne pas surcharger la présentation, les tableaux des résultats des mesures sont donnés en annexe V. Les rigidités longitudinales ont été calculées par $C_{ii} = \rho V_i^2$ et les modules de cisaillement par $G_{ij} = \frac{G_{ij} + G_{ji}}{2}$ ainsi que les facteurs de qualité $Q_{ij} = \frac{Q_{ij} + Q_{ji}}{2}$, bien que l'observation des résultats mette en évidence une dissymétrie entre les plans LR et RL, LT et TL, RT et TR, en particulier au niveau des atténuations.

Les résultats sur les variations de la rigidité ultrasonore et le facteur de qualité associé sont rassemblés dans les tableaux III.8. et III.9. Les valeurs excessivement faibles des facteurs de qualité font que d'une part, il semble que l'atténuation soit trop forte pour assimiler $\text{tg}(\delta/2)$ à $\alpha V/\pi f$, d'autre part, il y a une part externe très importante qui masque l'atténuation intrinsèque du matériau. De plus, le moyennage sur les plans LR, LT et RT masquent les variations qui ne sont pas les mêmes selon la direction de polarisation. En conséquence, les résultats sur l'atténuation sont difficilement exploitables quoique la tendance générale est que pour un maximum de la rigidité, on a un minimum de l'atténuation et inversement. Que les deux valeurs soient liées est normal, car il est possible par transformation de tirer de l'information sur la vitesse de phase l'information sur l'atténuation..

L'étude des variations sur les vitesses et rigidités permet de faire remarquer:

- pour les deux fréquences 1 MHz et 5 MHz (cas du hêtre), elles sont identiques
- hêtre : C_{LL} est minimum pour le traitement de 240 °C, toutes les autres sont maximales
- peuplier : toutes les rigidités sont minimales pour le traitement de 240 °C.
- douglas: C_{LL} est maximale pour le traitement de 240°C, C_{RR} est minimale.pour le traitement de 230 °C. Les variations sur les autres rigidités ne sont pas significatives.

Il semble donc qu'il existe une température critique 240°C pour laquelle on a un extremum des rigidités. Ceci est essentiellement marqué pour les feuillus bien que dans la direction longitudinale, hêtre et peuplier se comportent de manière opposée. Le fait que toutes les directions et les plans étudiés présentent le même type de variations laisse penser à un changement de structure moléculaire, cependant il est possible de l'attribuer :

- à la lignine: la littérature nous a montré que dans ce domaine de températures, elle se réticulait, et donc était plus rigide. Ceci peut expliquer les variations observées d'autant plus que représentant une matrice amorphe, elle a un comportement isotrope.

- à la cellulose: c'est surtout dans la direction L qu'on observe pour le douglas et le hêtre, une augmentation de la rigidité. Or, nous avons plusieurs fois noté chez des auteurs (Nakao et al.) que dans les basses températures de pyrolyse, le degré de cristallinité de la cellulose peut augmenter légèrement. D'autre part, il est possible que l'enroulement des fibrilles, et par conséquent l'angle des microfibrilles dans la paroi S2, ait été modifié sous l'effet de la chaleur et de la rigidification de la matrice ligneuse, modifiant ainsi les rigidités.

- à la dégradation des hémicelluloses: cet effet est surtout visible lors de la chute des rigidités, ces macromolécules servant de liant entre la cellulose et la lignine. C'est surtout l'adhérence de la cellule à la lamelle mitoyenne qui est détruite et l'effet est prépondérant dans la direction tangentielle et pour le cisaillement dans le plan RT..

III.2.1.5.2.2 Estimation du comportement global par la méthode des invariants acoustiques

Afin d'estimer de façon globale les changements dans les différents plans, nous avons calculé les invariants acoustiques dans chacun des plans, ainsi que le rapport d'anisotropie.

Bucur (1988) définit les quantités suivantes invariantes selon l'angle de propagation et qui valent pour $\alpha = 0$:

$$I_{L,R}^2 = 1/4 (V_{LL}^2 + V_{RR}^2 + 2 V_{LR}^2) \text{ (plan LR)}$$

$$I_{L,T}^2 = 1/4 (V_{LL}^2 + V_{TT}^2 + 2V_{LT}^2) \text{ (plan LT)}$$

$$\text{et } I_{R,T}^2 = 1/4 (V_{RR}^2 + V_{TT}^2 + 2V_{RT}^2) \text{ (plan RT)}$$

Ces quantités appelées invariants acoustiques sont des estimateurs du comportement acoustique global dans le plan considéré. Afin d'obtenir une estimation de l'anisotropie, on définit la quantité suivante, appelé rapport d'anisotropie, comme le rapport entre l'invariant dans le plan transversal et la moyenne des deux invariants dans les plans longitudinaux :

$$I_{\text{ratio}} = \frac{I_{R,T}}{(I_{L,R} + I_{L,T}) / 2}$$

Nous avons donc calculé pour les trois plans d'anisotropie les invariants $I_{L,R}$, $I_{L,T}$, $I_{R,T}$ ainsi que la quantité I_{ratio} . Les figures III.31, III.32, III.33, et III.34 montrent leurs variations relatives en fonction de la perte de masse sèche du matériau .

On retrouve dans leurs variations les mêmes tendances: comportements opposés du hêtre et du peuplier, variations identiques pour 1 et 5 MHz, comportement très différent du douglas. Pour les deux feuillus, les variations les plus importantes ont lieu dans le plan RT, tandis que pour le douglas, le plan le plus sensible est le plan LT. Le rapport d'anisotropie du peuplier n'évolue pratiquement pas, celui du hêtre augmente de 20% et celui du douglas chute de 20% pour le même traitement à 240°C.

<i>HETRE</i> 1 MHz						
traitement	ondes longitudinales			ondes transversales		
	C _{LL}	C _{RR}	C _{TT}	G _{LR}	G _{LT}	G _{RT}
naturel	163	36	17	17	12	5,4
230°	163	48	22	19	16	8,5
240°	138	54	26	29	18	8,7
250°	182	38	17	18	11	5,8
270°	165	35	15	17	11	4,6
<i>HETRE</i> 5 MHz						
traitement	ondes longitudinales			ondes transversales		
	C _{LL}	C _{RR}	C _{TT}	G _{LR}	G _{LT}	G _{RT}
naturel	129	33	18	17	14	5,7
230°	125	45	18	22	18	5,2
240°	114	49	24	25	20	8,3
250°	137	36	16	18	15	5,5
270°	122	33	13	17	14	4,7
<i>PEUPLIER</i> 5 MHz						
traitement	ondes longitudinales			ondes transversales		
	C _{LL}	C _{RR}	C _{TT}	G _{LR}	G _{LT}	G _{RT}
naturel	118	22	5,5	13	7,8	1,9
230°	123	24	6,2	14	8,3	2,6
240°	91	16	4,1	10	5,9	1,9
250°	114	21	5,6	12	7,5	2,6
270°	108	19	5,3	12	7,1	2,7
<i>DOUGLAS</i> 5 MHz						
naturel	76	25	16	13	11	1,6
230°	116	29	17	12	12	2,7
240°	132	22	17	11	11	2,2
250°	112	18	18	12	10	1,8
270°	99	23	15	10	8	1,3

Tableau III.8. Rigidités ultrasonores mesurées sur les cubes

<i>HETRE</i> 1 MHz						
traitement	ondes longitudinales			ondes transversales		
	100 Q _{LL}	100 Q _{RR}	100 Q _{TT}	100 Q _{LR}	100 Q _{LT}	100 Q _{RT}
naturel	66	54	61	152	157	112
230°	48	73	67	109	99	94
240°	72	59	78	76	80	82
250°	50	60	82	70	85	78
270°	81	65	121	105	126	91
<i>HETRE</i> 5 MHz						
traitement	ondes longitudinales			ondes transversales		
	100 Q _{LL}	100 Q _{RR}	100 Q _{TT}	100 Q _{LR}	100 Q _{LT}	100 Q _{RT}
naturel	33	41	15	37	21	33
230°	24	30	24	34	34	40
240°	41	37	13	32	34	32
250°	30	30	15	34	31	35
270°	28	42	16	38	32	37
<i>PEUPLIER</i> 5 MHz						
traitement	ondes longitudinales			ondes transversales		
	100 Q _{LL}	100 Q _{RR}	100 Q _{TT}	100 Q _{LR}	100 Q _{LT}	100 Q _{RT}
naturel	28	18	13	32	35	32
230°	10	15	29	28	38	15
240°	17	19	27	34	41	38
250°	21	18	40	35	56	34
270°	25	18	15	30	30	21
<i>DOUGLAS</i> 5 MHz						
naturel	26	22	21	38	14	28
230°	37	27	15	19	12	33
240°	32	21	12	22	26	33
250°	47	14	13	18	21	31
270°	38	27	14	54	24	17

Tableau III.9. Facteurs de qualité mesurés par ultrasons sur des cubes

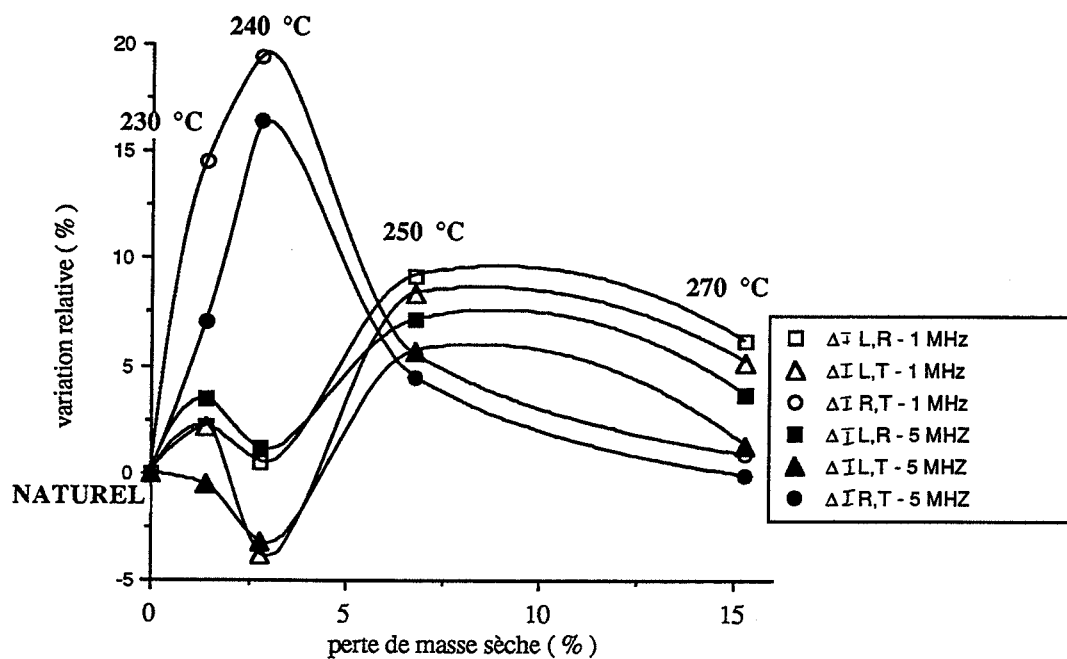


Figure III.31. Variations des invariants acoustiques - HETRE

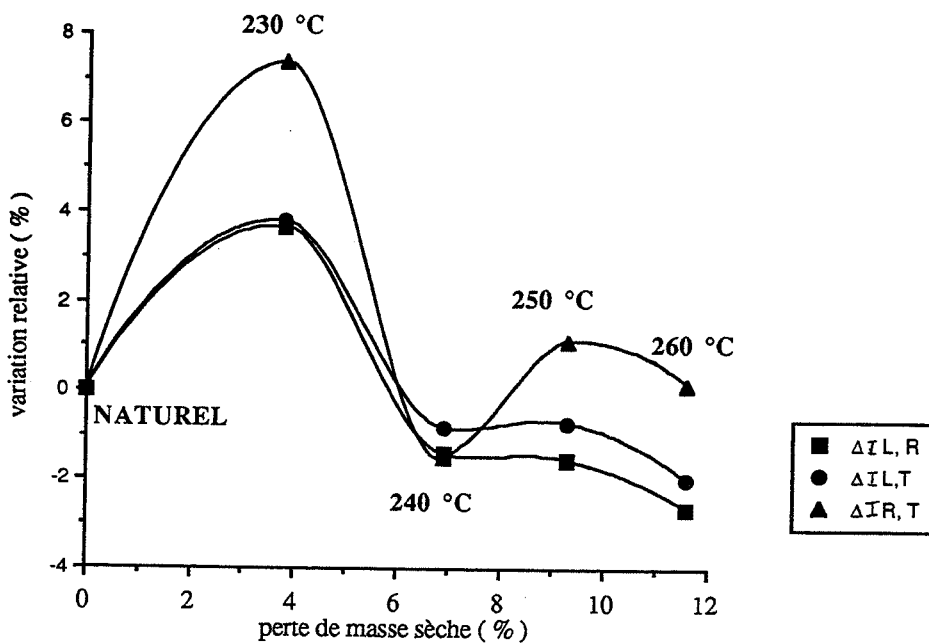


Figure III.32. Variations des invariants acoustiques - PEUPLIER

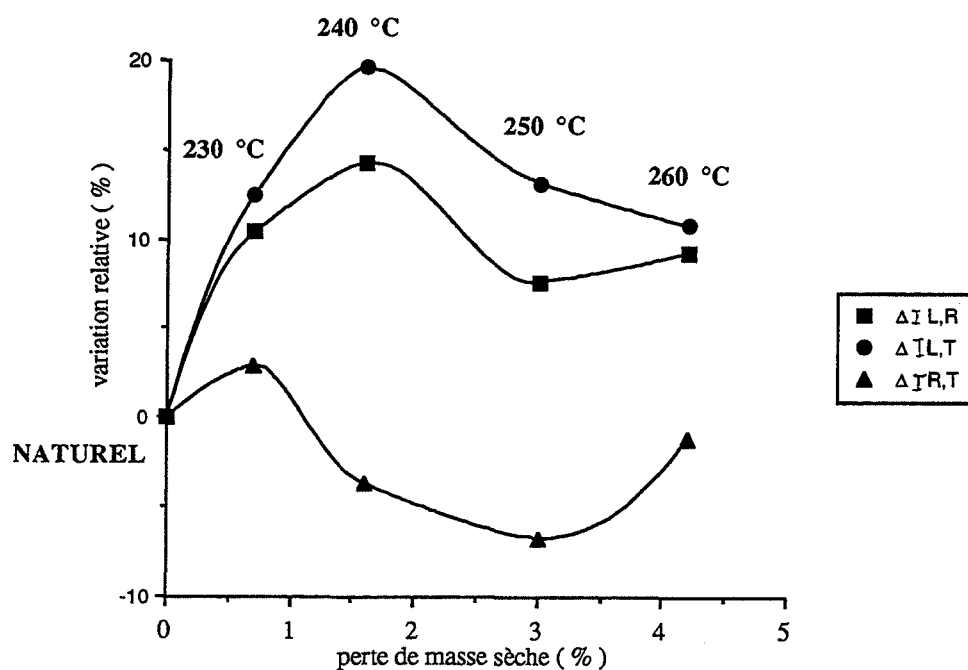


Figure III.33. Variations des invariants acoustiques - DOUGLAS

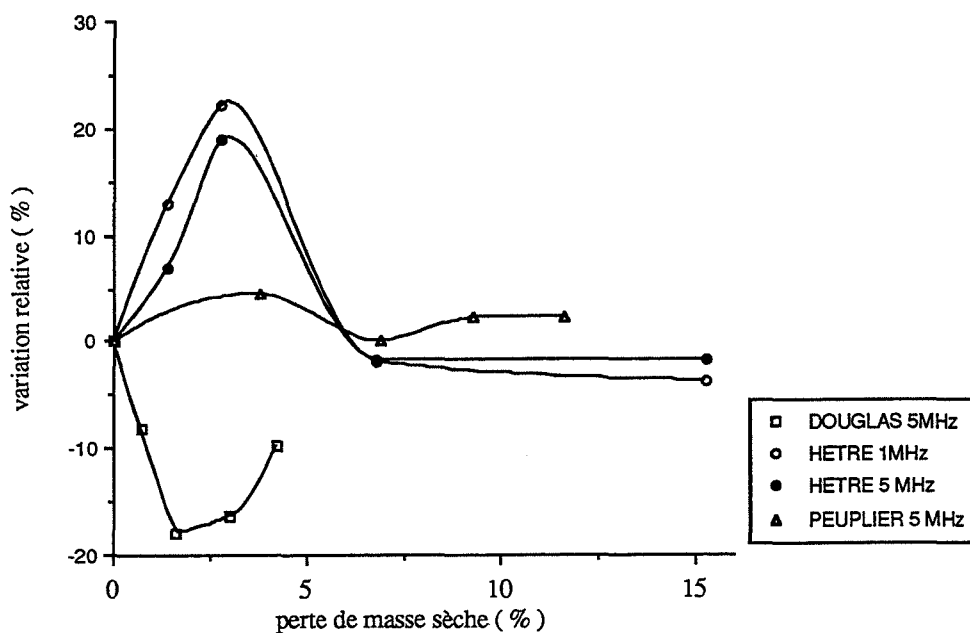


Figure III.34. Variations du rapport d'anisotropie

III.2.1.6. Conclusions

La méthode ultrasonore a permis de mettre en évidence que des changements de la structure avaient lieu pour le même traitement dans toutes les directions étudiées. Seule l'intensité des variations varie selon la direction, le plan le plus affecté étant le plan radial-tangentiel. Le comportement diffère selon les essences sans pouvoir déterminer une tendance commune ni aux feuillus, ni aux résineux. Un traitement à basse température a pour effet de réduire l'anisotropie des feuillus et d'augmenter celle du résineux. On peut penser que dans le cas du douglas, où il existe une distinction marquée entre bois initial et bois final, le traitement aggrave cette discontinuité et affaiblit l'interface entre les deux bois.

De façon générale, il apparaît que c'est la direction tangentielle la plus affectée par le traitement, accréditant ainsi l'hypothèse d'un affaiblissement de l'adhérence fibre-matrice du fait des réactions de déshydratation (rupture des liaisons H) et de la décomposition des hémicelluloses.

La variation sigmoïde observée dans la majorité des cas et pour tous les modes et directions de sollicitations (en se limitant quand même aux axes principaux) peut être expliquée soit par un changement de phase de la cellulose ou bien alors, un changement de structure de la lignine, qui se réticule sous l'effet de la chaleur, en protégeant ainsi les fibres qu'elle enrobe et en retardant les échanges de chaleur.

Remarque: Le problème de la définition d'une température de traitement est qu'elle ne correspond pas en réalité aux températures atteintes localement aux différents endroits du solide. Pour compliquer encore la situation, les transformations de la matrice - contraintes internes, créations de liaison, modifications des propriétés viscoélastiques - jouent également sur les transferts de chaleur et les modifient, car au cours du procédé, il y a couplage thermo-mécanique. Cependant, on est bien obligé de définir un état du solide après traitement que nous avons choisi de caractériser par la température de consigne et le temps de séjour. L'existence de gradients, les conditions initiales en humidité peuvent aussi jouer, en modifiant le spectre des énergies d'activation et les caractéristiques finales du matériau.

Le paramètre perte de masse peut aussi être utilisé comme indicateur, bien que les pertes de masses diffèrent beaucoup d'une espèce à l'autre et rendent difficiles la comparaison. D'autre part, une même perte de masse peut être obtenue pour des chemins et des mécanismes réactifs différents, car ce ne sont pas les mêmes réactions qui sont activées et il est peu probable si les cinétiques sont hétérogènes que la perte de masse reflète sans ambiguïté l'état final du bois traité thermiquement.

III.2.2. Vibrations forcées

L'étude des résonances d'une poutre en vibrations libres ou forcées offre également la possibilité d'accéder aux modules complexes du matériau de manière non destructive. Selon les conditions aux limites sur le système, la résolution de l'équation du mouvement permet de relier les fréquences de résonance du système à la partie réelle du module mécanique (indépendante de la fréquence si l'amortissement est faible) tandis que le facteur de qualité est relié à la mesure de l'amortissement autour de la résonance.

Dans le cas d'un matériau anisotrope, les mesures dans différentes directions ainsi que l'utilisation de différents modes de sollicitation (flexion, torsion, vibrations longitudinales) fournissent ainsi les parties réelles et les parties imaginaires des différents modules mécaniques du matériau dans les directions considérées. Dans le cas du bois, cependant, l'existence d'un fort couplage entre la direction radiale et la direction tangentielle complique la mise en équation dans les directions R et T. D'autre part, il est difficile d'un point de vue pratique de tailler des poutres à fort élancement dans ces directions du fait de la courbure des cernes .

Nous nous sommes donc contentés de travailler en flexion alternée selon la direction L et en torsion dans le plan LR afin d'estimer l'influence du traitement sur E_L et G_{LT} . Les mesures ont été effectuées au laboratoire de rhéologie du Pr Vinh à l'Institut Supérieur des Matériaux et de la Construction Mécanique de Saint-Ouen. La mise en équations dans le cas des poutres en flexion et des poutres en torsion (Fideler, 1983, Vinh,1990) est donnée en annexe VI. Cette analyse théorique permet de calculer les valeurs théoriques des modules en fonction des fréquences de résonance .

II.2.2.1. Montages expérimentaux

II.2.2.1.1. Montage expérimental de flexion alternée

La poutre montée horizontalement est excitée symétriquement en flexion. L'extrémité de la poutre se déplace devant deux capteurs électromagnétiques à réluctance variable. Des clinquants métalliques sont collés sur la poutre en face des capteurs pour assurer la conduction électromagnétique. Leur masse, très faible par rapport à la demi-masse de la poutre ne modifie pas l'équation aux valeurs propres et donc la fréquence de résonance (fig.III.35).

Ces capteurs sont reliés à un pont de Wheatstone alimenté en alternatif dont le signal de sortie, proportionnel à l'amplitude des vibrations de la poutre, est mesuré à l'aide d'un voltmètre et visualisé sur un oscilloscope. La fréquence du générateur est ajustée de façon à obtenir une amplitude maximum du mouvement. La valeur de cette fréquence, mesurée par le fréquencemètre, est notée comme fréquence de résonance f_0 . Seul le premier mode de résonance a été mesuré .

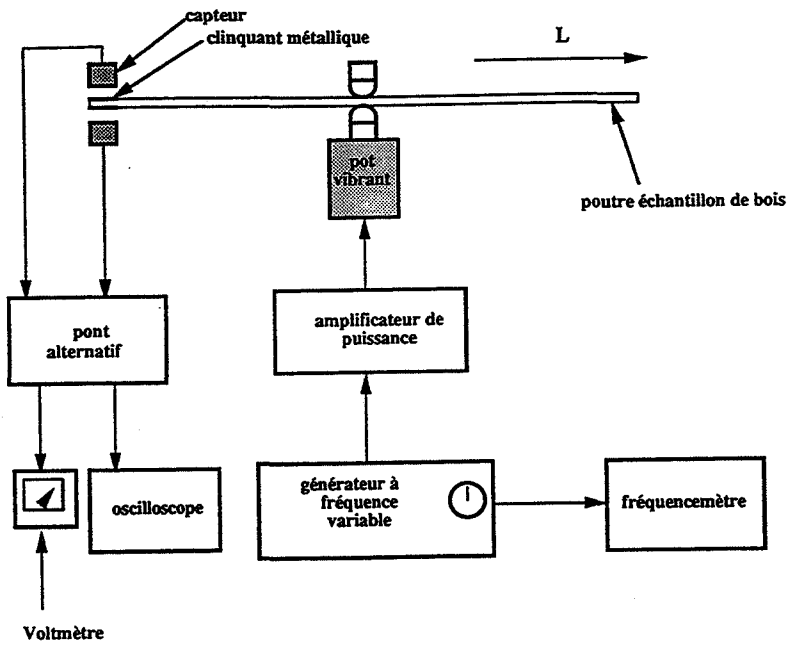


Figure III.35. Schéma du montage de flexion alternée

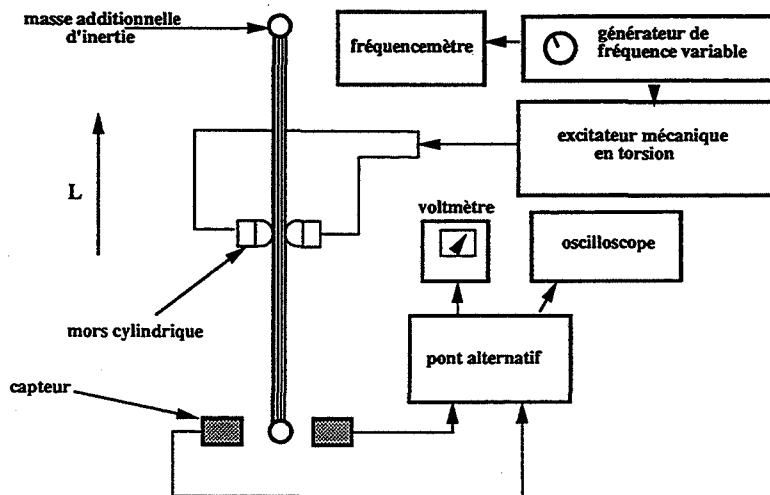


Figure III.36. Schéma du montage de torsion alternée (vue de face)

Le module a été calculé par la formule

$$E = \frac{48 \pi^2 (M)}{\beta_1^4 (b)} \cdot \left(\frac{L}{h}\right)^3 \cdot f_0^2 \quad (1)$$

avec $\beta_1 = 1,8751$, première racine de $1 + \operatorname{ch}\beta \cos\beta = 0$

On utilise $2M$ et $2L$ pour la masse et la longueur car la poutre est encastree au centre et symétrique. Chaque moitié de l'éprouvette correspond donc à une poutre cantilever classique.

Des éprouvettes à fort élancement ont été taillées dans l'axe L , les dimensions longitudinales variant entre 270 et 340 mm, avec une épaisseur de 5 mm et une largeur de 20 mm.

En régime harmonique forcé, on peut évaluer le module complexe $E^* = E' + j E''$. E' est calculé par la formule (1) à partir de la fréquence de résonance f_0 . La tangente de l'angle de perte (ou le facteur de qualité Q) est déterminée par la mesure de la bande passante autour de f_0 , correspondant à une atténuation à partir de l'amplitude maximale de 0,5 (cf figure III.37).

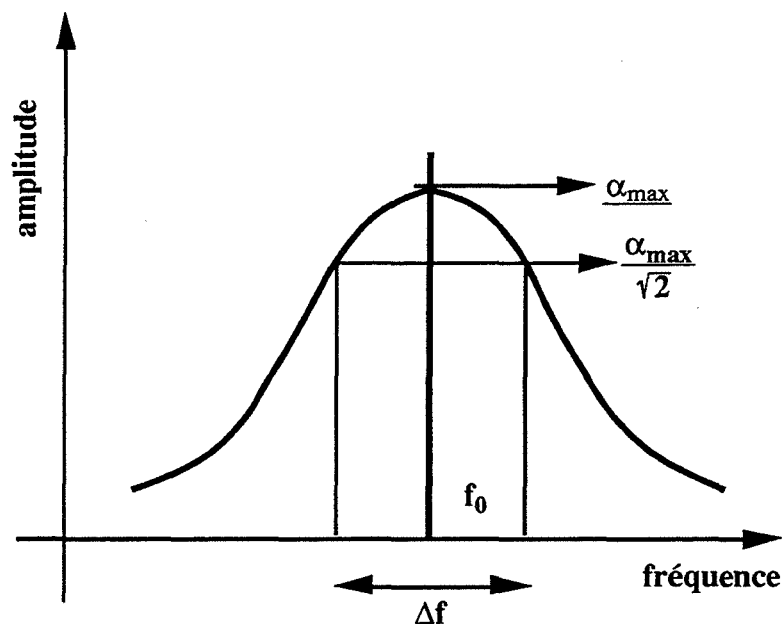


Figure III.37. Définition de la bande passante

L'angle d'amortissement est donné par

$$\operatorname{tg} \delta = \frac{\Delta f}{f_0}$$

et le facteur de qualité Q est son inverse.

III.2.2.1.2 Montage expérimental de torsion alternée

La poutre est montée verticalement et excitée symétriquement en torsion en son milieu à l'aide de mors cylindriques. Aux deux extrémités est fixée une masse inertielle métallique. A l'une de ses extrémité, la masse se déplace entre deux capteurs électromagnétiques (fig.III.36). De la même façon qu'en flexion, ces capteurs sont reliés à un pont de Wheatstone dont l'amplitude du signal de sortie, proportionnel à l'amplitude des vibrations de la masse additionnelle est mesuré par un voltmètre et visualisé sur un oscilloscope. On mesure la fréquence de résonance du premier mode et la bande passante (définie dans le paragraphe précédent). D'après l'étude théorique, le module de cisaillement est donné par:

$$G_{LR} = \frac{4\pi^2 f_1^2 L J}{bh^3 \beta(c)} \quad \text{avec}$$

$$\beta(c) = \frac{32c^2}{\pi^2} \sum_{k=1,3,\dots}^{\infty} \frac{1}{k^4} \left(1 - \frac{2c}{k\pi} \operatorname{th} \frac{k\pi}{2c} \right)$$

et

$$C = \frac{b}{h} \sqrt{\frac{G_{TR}}{G_{LT}}}$$

Le moment d'inertie de la masse additionnelle vaut $J = 3,1 \cdot 10^{-6} \text{ kg.m}^2$.

Les rapports $\frac{G_{RT}}{G_{LR}}$ ont été calculés à partir des mesures ultrasonores et pris constants égaux à 0,15 pour le peuplier, 0,30 pour le hêtre et 0,12 pour le douglas.

III.2.2.2. Résultats

Les essais ont été effectués sur l'échantillonnage de hêtre, peuplier et douglas déjà décrit auparavant. Pour les essais en torsion alternée, nous avons retailé trois poutres de section 5*2 afin de pouvoir les adapter sur le montage dans les poutres ayant servis à la détermination du module par flexion alternée. Les résultats sont donnés dans le tableau III.10 (les chiffres entre parenthèses représentent le coefficient de variation, rapport de l'écart-type sur la moyenne).

Cependant, il apparaît lorsqu'on compare statistiquement les moyennes que seules les variations des facteurs de qualité sont significatives, les variations des modules étant masquées par la dispersion des valeurs expérimentales.

SERIE	E_L (10^8 Pa)	Q_L (sans dim)	G_{LT} (10^8 Pa)	Q_{LT} (sans dim)
<i>PEUPLIER</i>				
NATUREL	144 (10,4)	116 (17,2)	7,9 (4,7)	41 (5,9)
230 ° C	135 (22,0)	150 (29)	9,8 (1,1)	63 (3,2)
240 ° C	145 (10,3)	177 (7,3)	6,9 (9,0)	30 (10,0)
250 ° C	156 (14,1)	158 (12,0)	7,2 (7,1)	62 (10,0)
260 ° C	118 (9,5)	183 (43)	7,4 (2,2)	47 (10,0)
<i>HETRE</i>				
NATUREL	140 (0,7)	111 (7,1)	8,4 (7,1)	36 (4,1)
230 ° C	154 (16,2)	129 (20,9)	15,2 (6,7)	86 (21,5)
240 ° C	136 (14,0)	115 (25,2)	14,7 (7,7)	10 (1,7)
250 ° C	138 (9,4)	143 (7,7)	12,7 (6,1)	88 (3)
270 ° C	136 (2,9)	134 (15,7)	13,2 (2,4)	72 (10)
<i>DOUGLAS</i>				
NATUREL	157 (9,6)	163 (10,4)	10,8 (13,6)	61 (13,3)
230 ° C	104 (26,9)	161 (21,7)	11,1 (2,0)	57 (17,1)
240 ° C	167 (10,2)	192 (19,3)	10,3 (1,4)	51 (6,3)
250 ° C	165 (9,1)	183 (10,9)	10,2 (4,4)	61 (2,0)
260 ° C	144 (11,8)	197 (20,8)	7,4 (28,7)	58 (5)

Tableau III.10. Valeurs mesurées en vibrations des modules et des facteurs de qualité

III.2.2.3. Conclusions

Dans le cas des vibrations libres, les variations observées sur les modules sont masquées par la dispersion statistique de l'échantillonnage et n'apparaissent pas significatives. Par contre, au niveau des facteurs de qualité, on observe un phénomène très intéressant déjà observé sur les mesures ultrasonores: elles présentent un extrémum pour le traitement à 240°C. Pour le facteur de qualité Q_L , le comportement du peuplier et du douglas est identique, tandis que le hêtre a un comportement inversé. Pour le facteur de qualité Q_{LT} , un minimum est observé pour les trois essences bien que très faible pour le douglas et très marqué pour le hêtre. L'augmentation conjointe du facteur de qualité et du module d'Young longitudinal présente un intérêt pour l'acoustique des instruments de musique où un module élevé et un faible amortissement sont requis (Ono et Norimoto, 1984).

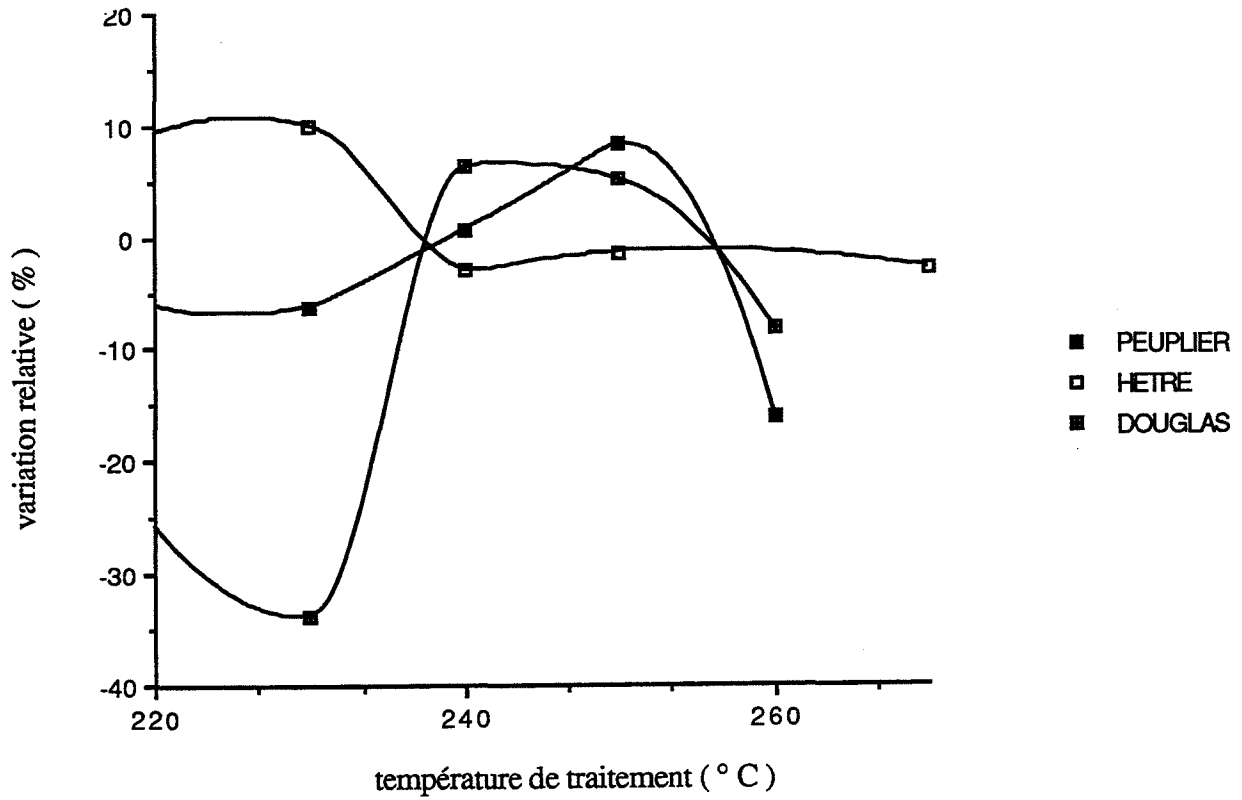


Figure III.38. Variations du module dynamique E_L

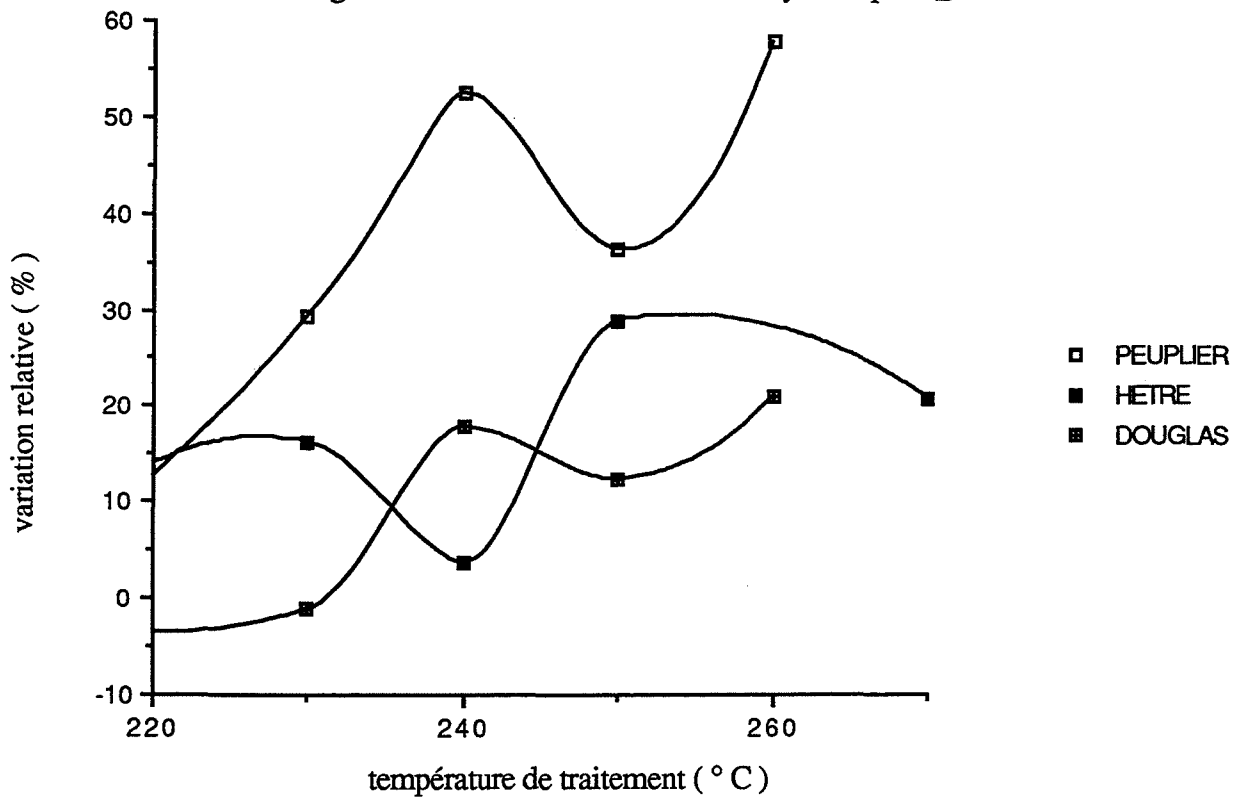


Figure III.39. Variations du facteur de qualité Q_L

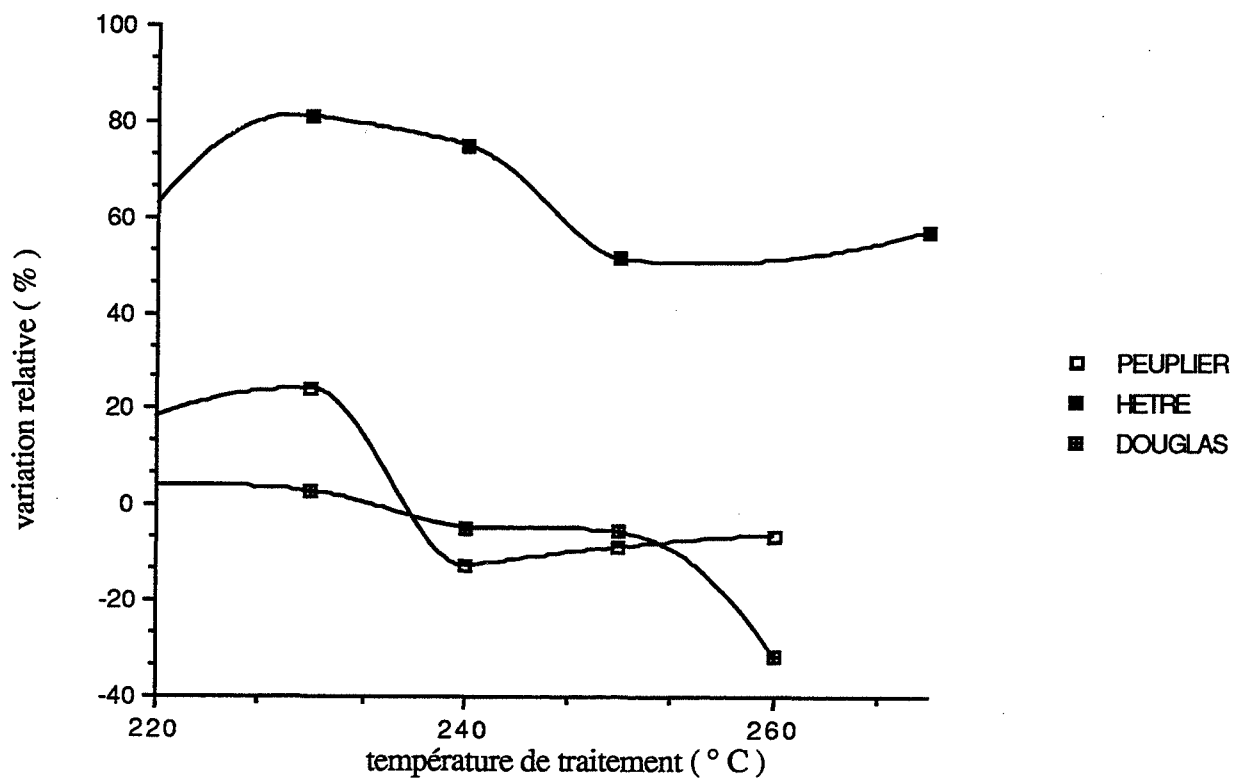


Figure III.40. Variations du module dynamique de cisailment G_{LT}

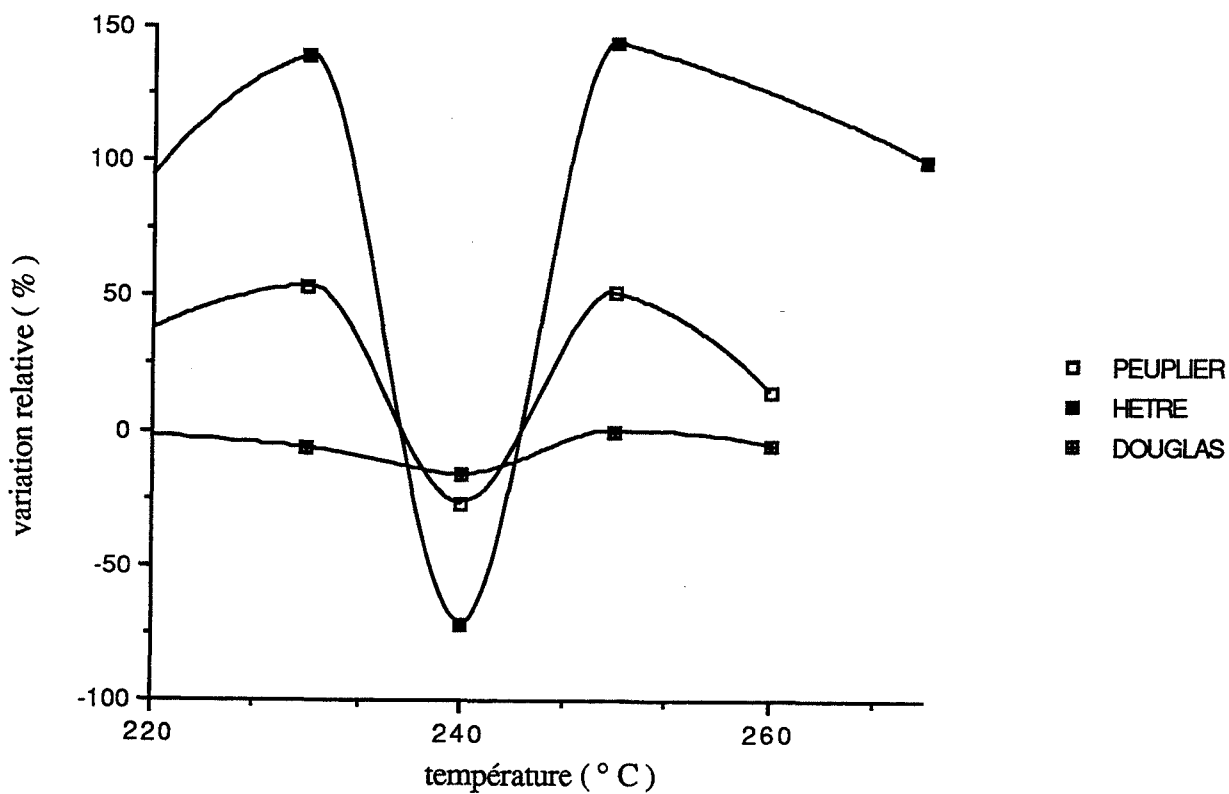


Figure III.41. Variations du facteur de qualité Q_{LT}

III.2.3. Essais statiques

Tous les essais que nous avons décrits précédemment étaient des essais de caractérisation non destructifs qui ne pouvaient nous donner aucun renseignement sur les contraintes limites à la rupture dans les différentes directions d'anisotropie du bois et pour les différents modes de sollicitation possibles. Or, pour l'emploi d'un matériau quelqu'il soit, il est indispensable de connaître ces valeurs. Un des problèmes principaux de la caractérisation mécanique des matériaux anisotropes est la mise au point d'essais représentatifs dans les directions principales, car il faut s'assurer que lors des essais, le champ des contraintes est homogène dans l'échantillon de matériau testé. Dans le cas du bois, il est très difficile de réaliser des géométries et des montages mécaniques répondant à ces conditions. De plus, le comportement mécanique est différent suivant que le matériau est testé en compression, en traction ou en flexion. Quant aux essais de cisaillement, il est très difficile en règle générale d'obtenir un état de cisaillement pur (voire impossible).

Notre objectif s'est limité aux essais normatifs de flexion quatre points (NF B 51-008 et NF B 51-016), complétés par des essais de compression (NF B 51-007) dans la direction longitudinale réalisés au CTBA sur l'échantillonnage d'épicéa déjà testé aux ultrasons. Au vu de nos résultats, nous avons réalisés quelques essais complémentaires en flexion trois points selon l'ancienne norme NF B 51-008 (non parce que nous ne voulions pas faire de la flexion quatre points, mais parce que c'était le seul montage de flexion dont nous disposions) afin de regarder l'influence d'un temps de traitement variable pour une température fixe, et également comparer les poutres traitées en bain d'huile et les poutres traitées dans le four à gaz.

II.2.3.1. Essais de compression

Les résultats des essais de compression longitudinale sont donnés dans le tableau III.11. On voit dans ce tableau que les caractéristiques du comportement à la compression dans le sens L ont peu été modifiées par le traitement. La comparaison statistique des moyennes sur la contrainte limite ne met en évidence aucune variation significative, tandis qu'on note une légère augmentation du module pour le traitement à 250 °C, ce qui confirme nos essais en ultrasons.

SERIE		Contrainte limite sens L (MPa)	Module apparent sens L (100 MPa)
NATUREL	minimum	19	28.8
	maximum	66	88.0
	moyenne	45	53.7
	CV	21.2	25.8
250 ° C	minimum	23	22.6
	maximum	69	100.8
	moyenne	43	68.4
	CV	23	21.1
260 ° C	minimum	27	37.5
	maximum	69	132.0
	moyenne	45	65.4
	CV	21.7	25.6
270 ° C	minimum	24	36.7
	maximum	68	100.8
	moyenne	47	65.0
	CV	21.3	21.0

Tableau III.11. Résultats de l'essai de compression longitudinale

III.2.3.2. Flexion circulaire (ou quatre points)

III.2.3.2.1. Description

Cet essai est l'essai recommandé par la norme pour la détermination du module longitudinal en flexion, car entre les appuis, il y a un moment fléchissant constant.

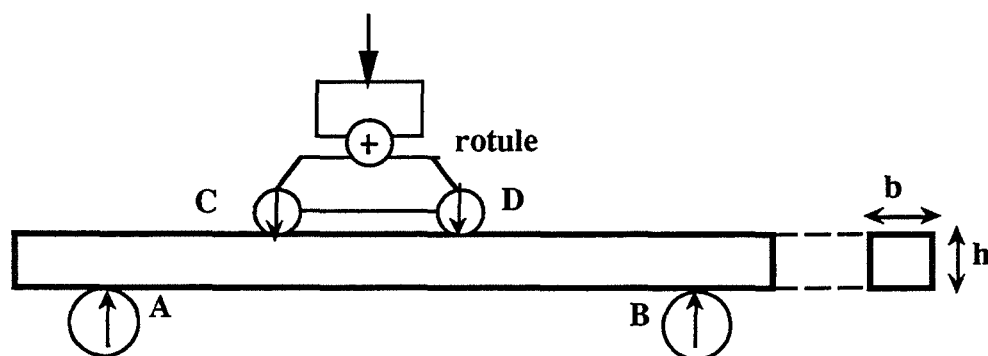


Figure III.42. Schéma du montage de flexion circulaire

L'éprouvette parallépipédique de dimension $L = 340$ mm, de largeur 20 mm et d'épaisseur 20 mm est placée sur deux appuis extérieurs de portée $L = 270$ mm, dont les profils circulaires ont un diamètre de 80 mm, afin de minimiser les déformations plastiques au niveau des appuis au voisinage de la force de rupture. L'effort est imposé au moyen de deux rouleaux intérieurs avec une portée $a = \frac{L}{3}$ de 90 mm.

L'hyperstaticité de ce mode de chargement est réduite par l'existence d'une liaison rotule, assurant un degré de liberté en rotation supplémentaire par rapport à l'axe perpendiculaire au plan de chargement. Elle permet d'encaisser les non homogénéités longitudinales éventuelles des éprouvettes.

III.2.3.2.2. Résultats expérimentaux

Les essais de flexion quatre-points ont été effectués au laboratoire d'essais mécaniques du CTBA. Les éprouvettes de dimension $340*20*20$ ont été testées avec l'effort parallèle à la direction tangentielle selon le montage décrit précédemment. Pour l'obtention du module d'élasticité, la flèche a été mesurée à l'aide d'un capteur de déplacement et la force appliquée par un anneau de force monté au niveau de la rotule. La mesure directe de la force permet de s'affranchir des éventuels frottements aux niveaux des vérins de la machine d'essai.

L'éprouvette a donc été dans un premier temps chargée dans son domaine d'élasticité et les données flèche et effort ont été acquises et stockées sur un ordinateur, où un programme de régression linéaire calcule directement le module après acquisition. Toutes les poutres test ont donc subies un premier chargement afin de mesurer le module E_L , puis un nouveau chargement poussé jusqu'à la rupture. Pour le peuplier, 10 poutres ont été testées pour chaque état, tandis que pour le hêtre et le douglas, seules quatre poutres par état ont été testées. Pour chaque essai, on a donc mesuré le module d'élasticité E_L , puis la force limite d'élasticité et la force maximale à la rupture, dont on déduit la contrainte limite d'élasticité et la contrainte maximale à la rupture.

Les moyennes et les coefficients de variations des différentes séries des résultats sont données dans le tableau III.12. Nous avons également calculé le travail mécanique à la rupture majoré par la relation $W_r = \frac{1}{2} \sigma_{el} \varepsilon_{el} + (\varepsilon_r - \varepsilon_{el}) \cdot \sigma_r$, le dernier terme n'intervient dans le calcul que pour le bois naturel, car dans le cas du bois rétifé, le comportement est linéaire jusqu'à la rupture.

SERIE	E_L (10^2 MPa)	ϵ_{el} (%)	σ_{el} (MPa)	ϵ_r (%)	σ_r (MPa)	W_r (kJ)
<i>PEUPLIER</i>						
NATUREL	141 (10.6)	20.0 (15.5)	43 (9.3)	54 (4.9)	82 (4.9)	33 (30)
230 °C	145 (12.4)	***	***	24 (20.8)	48 (20.8)	6 (46)
240 °C	148 (11.5)	***	***	23 (30.8)	52 (30.8)	6 (55)
250 °C	146 (8.2)	***	***	19 (4.6)	41 (19.5)	4 (46)
260 °C	139 (8.7)	***	***	18 (7.4)	38 (44.7)	4 (76)
<i>HETRE</i>						
NATUREL	119 (5.9)	27 (8.8)	55 (5.1)	55 (4.7)	97 (9.3)	69 (7.0)
230 °C	149 (13.4)	***	***	33 (0.5)	86 (7.0)	14 (7.0)
240 °C	98 (13.2)	***	***	29 (5.4)	53 (24.5)	8 (29.0)
250 °C	154 (7.1)	***	***	20 (2.2)	50 (10.0)	5.1 (6.8)
260 °C	133 (1.5)	***	***	19 (5.3)	47 (14.9)	4.7 (48.0)
<i>DOUGLAS</i>						
NATUREL	143 (10.5)	25 (6.0)	62 (5.0)	37 (17.0)	83 (15.7)	42 (7.0)
230 °C	113 (61.0)	***	***	12 (52.1)	43 (83.7)	2 (7)
240 °C	137 (51.8)	***	***	18 (1.5)	39 (35.9)	3 (29)
250 °C	146 (32.9)	***	***	24 (14.7)	51 (58.8)	8 (113)
260 °C	141 (41.8)	***	***	51 (58.8)	35 (42.9)	3 (48)

Tableau III.12. Résultats des essais de flexion quatre points

II.2.3.2.3. Discussion

Afin de bien illustrer l'essai, nous reproduisons ci-dessous les courbes effort-déplacement mesurées sur le peuplier naturel et le peuplier traité.

Le premier point remarquable est que le bois rétifé présente un comportement linéaire jusqu'à la rupture. Il n'y a plus de phase plastique et l'allongement à la rupture est très faible. Le matériau est devenu **fragile**. Si l'on regarde les résultats du tableau, on s'aperçoit que la résistance à la rupture chute d'environ 50 %, et que le travail maximum chute d'environ 80 %! Les grandes dispersions sur les valeurs ne permettent pas de tirer des conclusions sur la comparaison des différents traitements entre eux, la variation n'apparaissant pas significative. La résistance à la rupture chute dès 230 °C, mais présente une légère remontée à 240 °C. Ce serait donc dans cette zone de température que débuteraient les réactions de condensation de la lignine.

Il paraît logique d'expliquer la diminution de l'énergie mécanique nécessaire pour rompre une poutre de bois par le fait qu'une grande partie des liaisons ont déjà été rompues lors de l'apport d'énergie par chaleur. D'autre part, la disparition complète de la phase plastique dès les premières températures de traitement est plutôt à attribuer à l'évacuation de l'eau et à la rupture des liaisons hydrogène qu'à la dégradation des hémicelluloses, celle-ci intervenant plus haut en température.

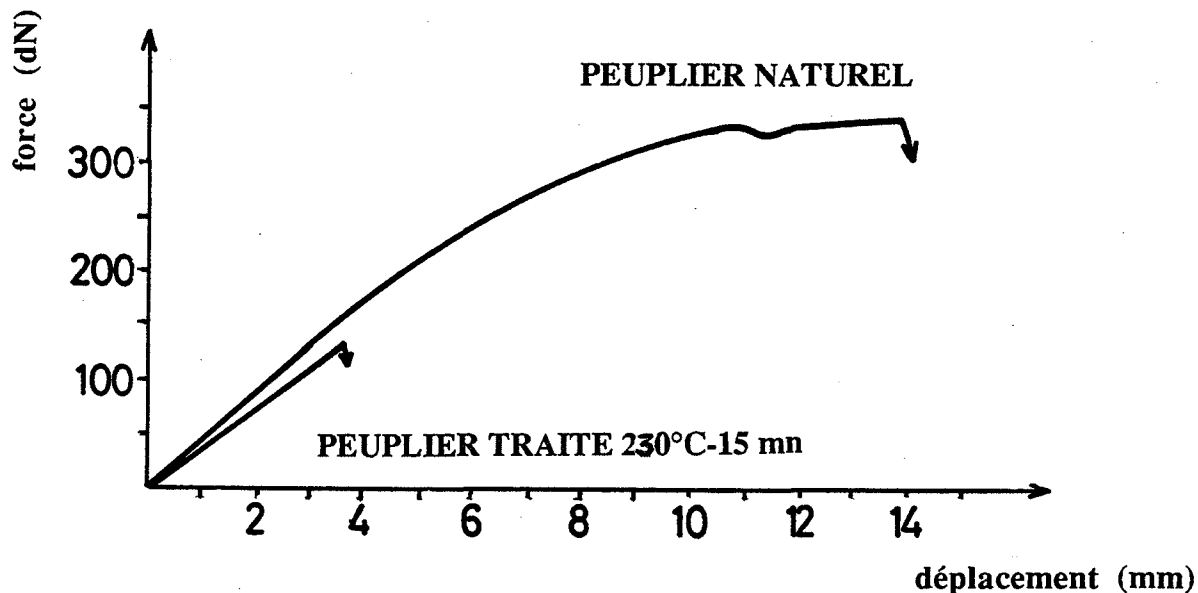


Figure III.29. Courbes effort - déplacement

III.2.3.3. Essais en flexion trois points

III.2.3.3.1 Essais sur les poutres traités en four à gaz

Les essais sur des traitements de durée variable et de température fixe présentent ils les mêmes variations que les essais réalisés sur des traitements de durée fixe et de température variable ? (auquel cas nous vérifions l'équivalence temps-température). Cette question s'est posée à nous quand nous avons observé systématiquement le même type de variations sur les caractéristiques mécaniques quelle que soit la méthode employée. Nous avons donc réalisé des essais complémentaires en rétifant des échantillons de peuplier et de pin à différentes temps pour une température de traitement fixe de 220 ° C (fig. III.30).

Il s'est avéré que dans la limite de nos essais, le même type de variations pouvait s'observer quand on faisait varier le temps de séjour que quand on fait varier la température. Il semble donc qu'il y a une équivalence temps-température et qu'elle peut être appliquée à notre cas.

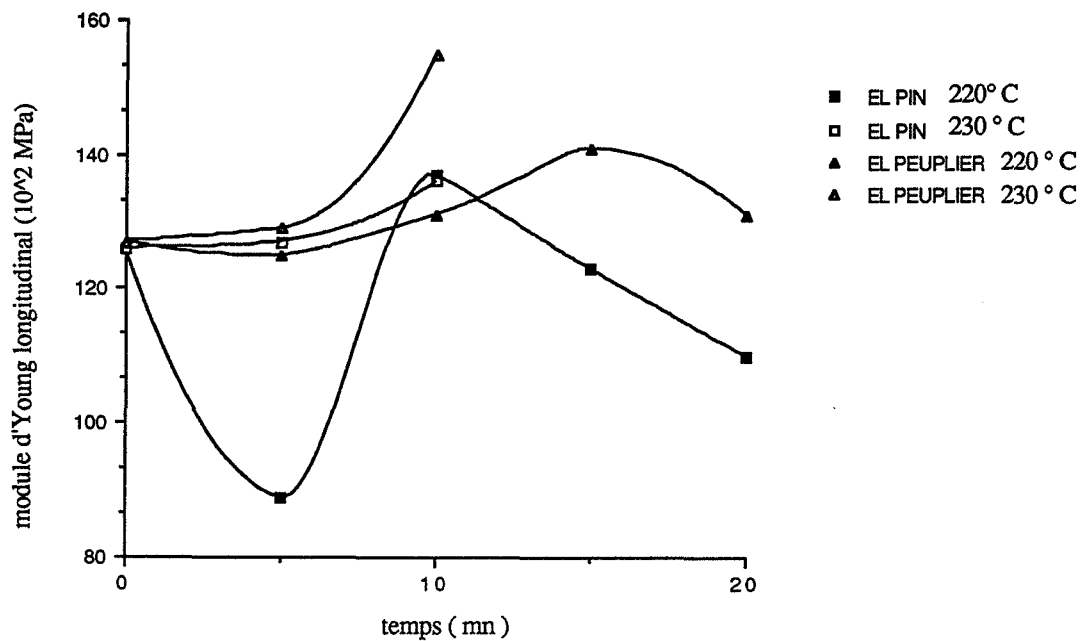


Figure III.30. Variations du module d'Young longitudinal en fonction du temps de traitement

III.2.3.3 2.Essais sur les poutres traitées en bain

Bien sûr, le procédé en phase gazeuse et le procédé en bain d'huile sont différents et il serait intéressant d'estimer les propriétés mécaniques de poutres traitées en bain afin de voir si les changements sont identiques ou si au contraire on observe des différences entre les deux procédés. Les quelques essais que nous avons faits montrent que par un traitement en bain d'huile, ni le module d'Young, ni la résistance à la rupture déterminés en flexion trois points dans le sens longitudinal sur du pin et du peuplier (quatre échantillons par état), ne semblent pas affectés comme c'est le cas pour les poutres traitées en atmosphère gazeuse (fig. III.31, fig.III.32, fig. III.33, fig.III.34).

III.2.3.4. Conclusions

Les essais statiques nous ont permis de constater que le matériau traité en atmosphère gazeuse est fragilisé. Il a perdu toute sa plasticité et résiste très mal aux chocs. Cette chute des résistances n'intervient pas en compression, et se visualise surtout en flexion. On peut donc penser que c'est le

comportement à la traction qui a été essentiellement modifié, laissant penser que ce sont les fibrilles de celluloses qui ont été touchées, essentiellement par les modifications des zones amorphes et la disparition des liaisons H.

Le comportement mécanique des bois traités en bain d'huile ne présente pas de changements notables. En particulier, on n'observe pas de chute du module de résistance à la rupture en flexion. Cette différence entre les deux procédés, bain d'huile et gaz, est difficile à expliquer, d'autant plus que les profils de température mesurés sont similaires. Il est possible que le confinement des produits de réaction dans le cas des échantillons traités en bain d'huile conduit à des réactions différentes et par conséquent des propriétés différentes. D'autre part, l'histoire complexe des contraintes résiduelles développées ou relaxées en cours de traitement influe sur les propriétés finales du matériau. Or, il semble que dans le cas du bain d'huile, il y ait une meilleure relaxation des contraintes que dans le cas du four à gaz, conduisant ainsi à un matériau plus stable et nettement moins fragilisé.

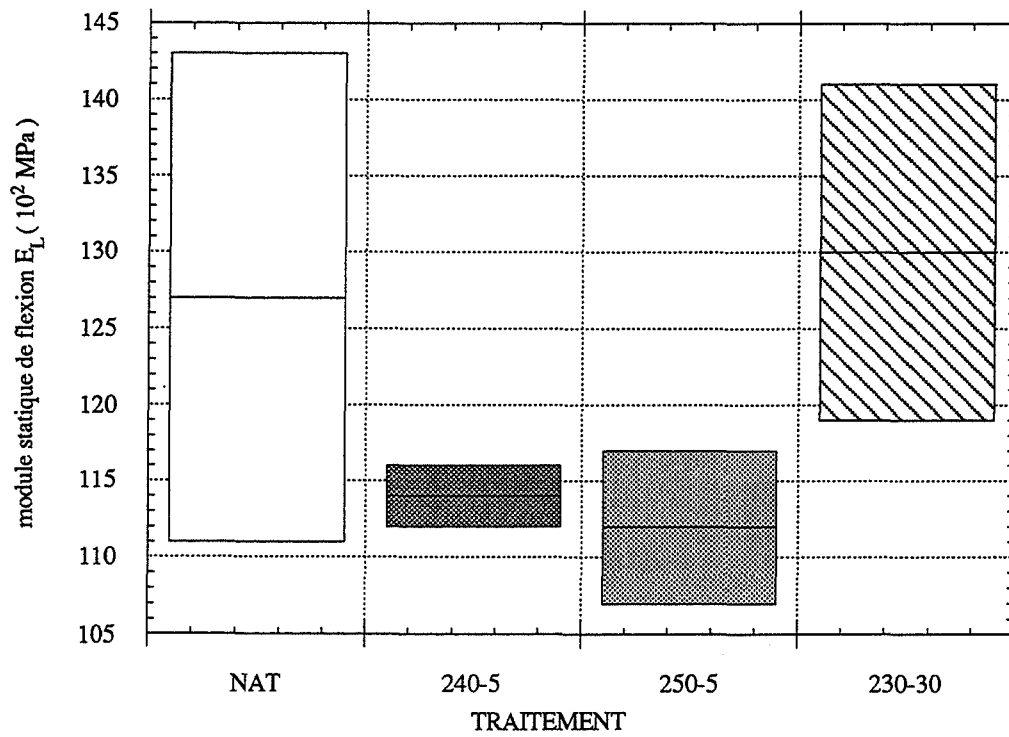


Figure III.31. Variations du module d'Young longitudinal en fonction du traitement - peuplier traité en bain d'huile-

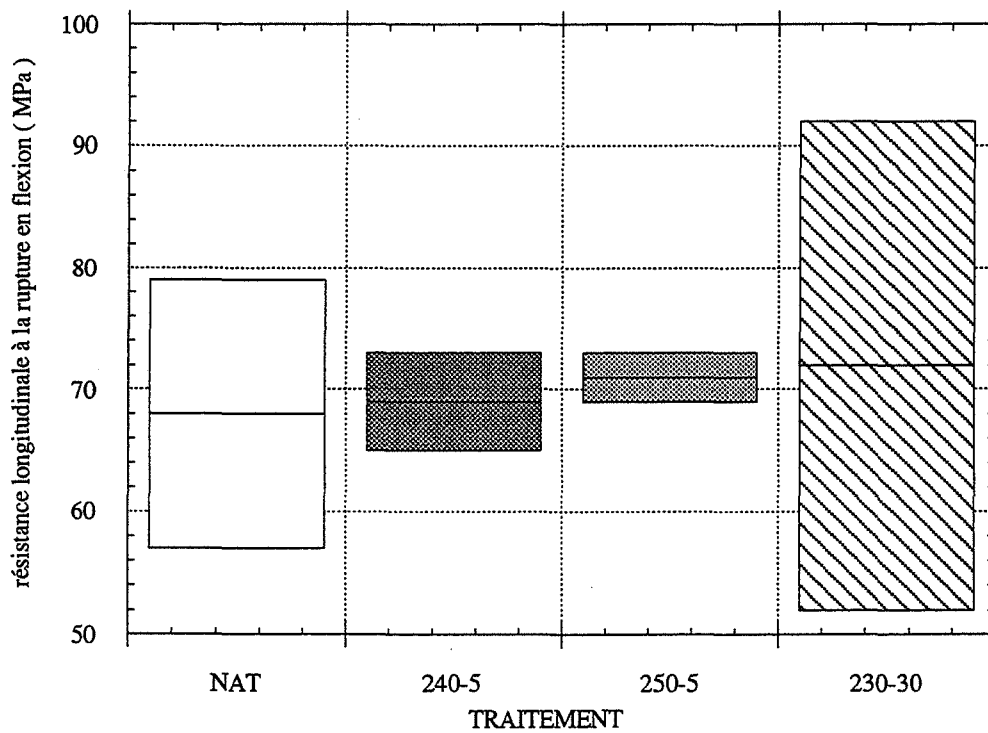


Figure III.32. Variations de la résistance longitudinale à la rupture en fonction du traitement - peuplier traité en bain d'huile-

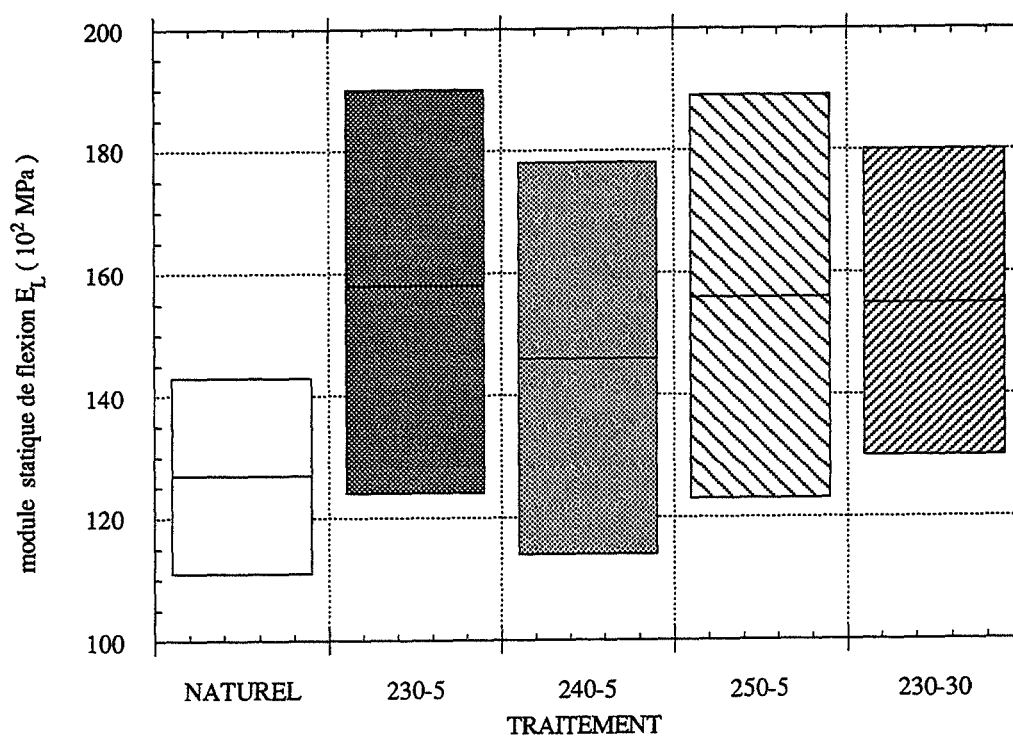


Figure III.31. Variations du module d'Young longitudinal en fonction du traitement - pin traité en bain d'huile-

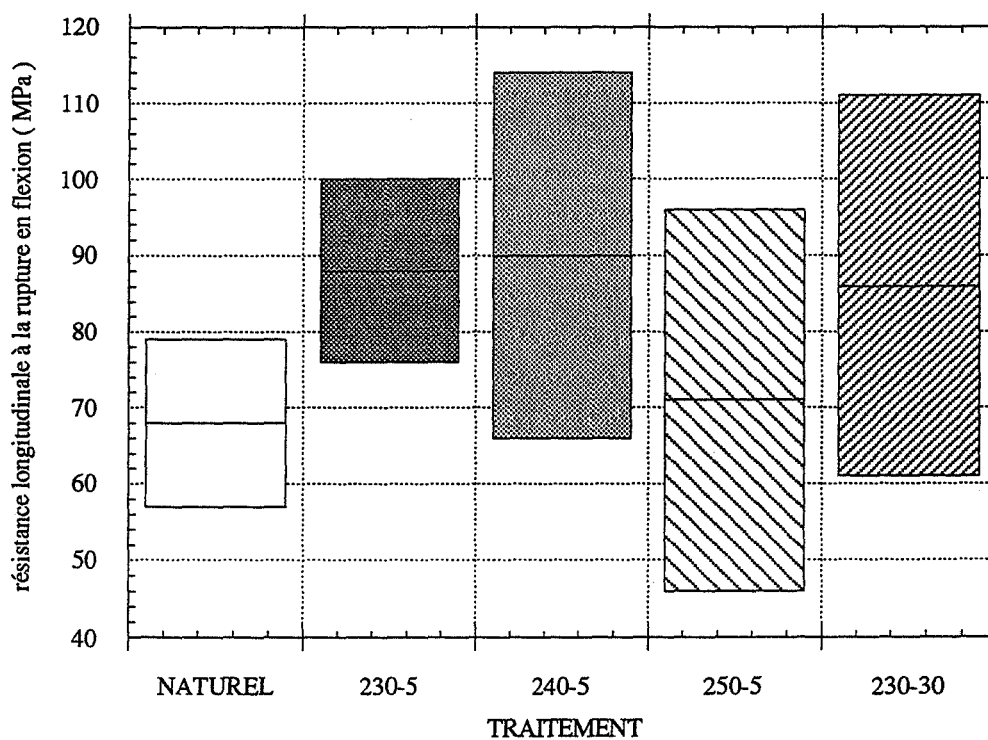


Figure III.32. Variations de la résistance longitudinale à la rupture en fonction du traitement - pin traité en bain d'huile-

III.2.4. Analyse Thermo Mécanique

Du fait de l'équivalence temps-température, une méthode pour caractériser le comportement rhéologique d'un matériau viscoélastique est de le solliciter en charge en faisant varier la température. Cette méthode d'analyse thermique s'appelle Analyse Thermo Mécanique (ou TMA, Thermo Mechanical Analysis). Lorsque la sollicitation mécanique est périodique de fréquence f , on a affaire à de l'Analyse Thermo Mécanique Différentielle (ou DTMA : differential Thermal Mechanical Analysis). Cette dernière méthode permet d'étudier les effets conjugués de la température et de la fréquence et délivre la partie réelle du module complexe et la tangente de l'angle de perte correspondant en fonction de la température pour différentes fréquences. .

Nous avons travaillé en analyse thermomécanique simple. Les essais ont été effectués au laboratoire de photochimie appliquée de l'Université de Nancy I sur un analyseur Mettler TMA40; mais nous n'avons pu pour des raisons de temps qu'étudier les réponses de nos échantillons de peuplier et de douglas.

II.2.4.1. Principe de la mesure

II.2.4.1.1. Appareillage

L'analyseur est équipé de plusieurs micro-montages mécaniques qui permettent de travailler sous différents modes de sollicitation (flexion, traction, compression). Nous avons choisi de travailler en compression sur des petits morceaux de bois (d'épaisseur 5 mm environ) dans la direction radiale. En effet, comme nous l'a montré le premier chapitre (§ I.5.5), les effets de transition vitreuse et de ramollissement du bois sont plus visibles dans le plan transversal, car dans la direction longitudinale, ils sont masqués par la contribution de la cellulose semi-cristalline qui restreint les mouvements moléculaires. D'autre part, une sollicitation en compression, au contraire d'une sollicitation en traction fera plus jouer les effets de la lignine dont les modifications par le traitement sont à notre avis les principales responsables des changements déjà observés dans le comportement mécanique.

Le montage de compression (ou plutôt de pénétrométrie, car la sonde a un diamètre de 1 mm) et l'appareillage de mesure du TMA40 sont décrits dans la figure III.33. Le noyau du transducteur différentiel est directement relié à la sonde de mesure. Ainsi, une variation de longueur de l'échantillon provoque un décalage correspondant du noyau par rapport à la bobine et génère de ce fait un signal électrique proportionnel à la déviation.

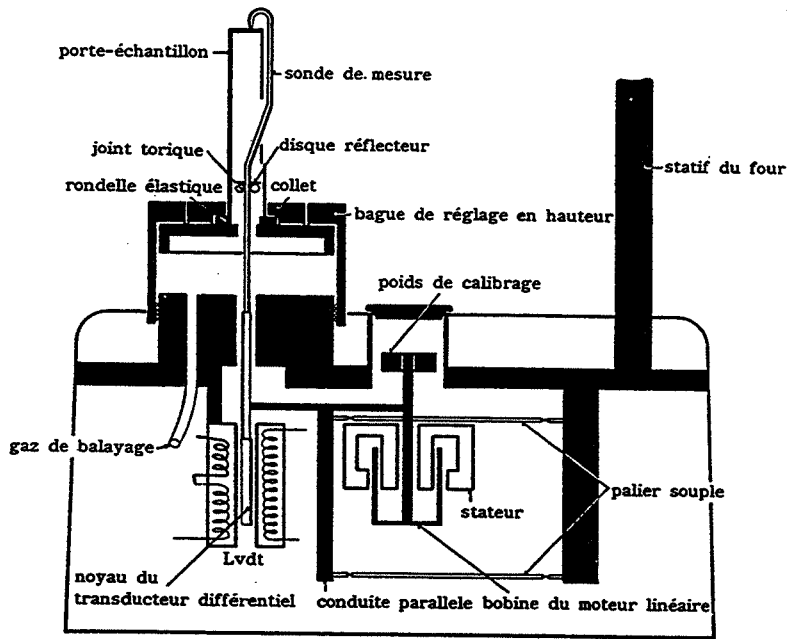


Figure III.33. Schéma explicatif de l'appareillage

Une force est exercée sur la sonde de mesure à l'aide d'un moteur linéaire qui doit en premier lieu compenser le poids de la tige de mesure. La force d'application résulte de la différence du poids de la tige par un force légèrement inférieure

II.2.4.1.2. Programmation en température

Pour que l'échantillon atteigne la température finale désirée, il faut anticiper celle-ci à la programmation d'un $\Delta T = \tau \cdot \frac{dT}{dt}$, où τ est un polynôme du second degré dont les coefficients dépendent des caractéristiques thermiques de l'échantillon et $\frac{dT}{dt}$ est la vitesse de montée en température (fig.III.34).

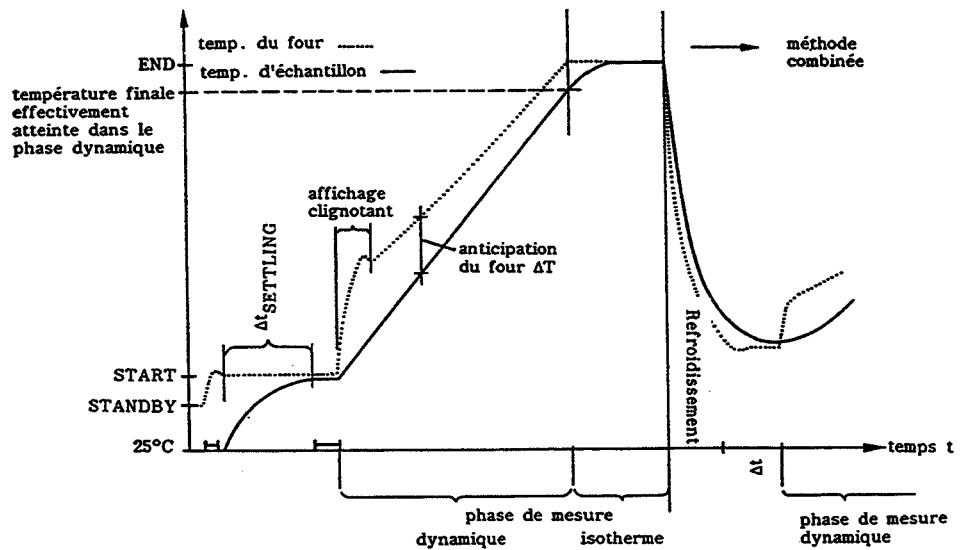


Figure III.34. Programmation en température

III.2.4.2 Résultats

Nous avons testé en compression avec une force de 2 N et une sonde de 1 mm de diamètre des petits morceaux de bois taillés dans les échantillons qui avaient déjà servis à la flexion dynamique. Ces échantillons ont été comprimés dans la direction radiale sous une vitesse de montée en température de 10°C / mn sous atmosphère ambiante. Nous avons testés 7 échantillons par état dans le cas du peuplier et 5 dans le cas du douglas.

III.2.4.2.1. Allure générale des courbes

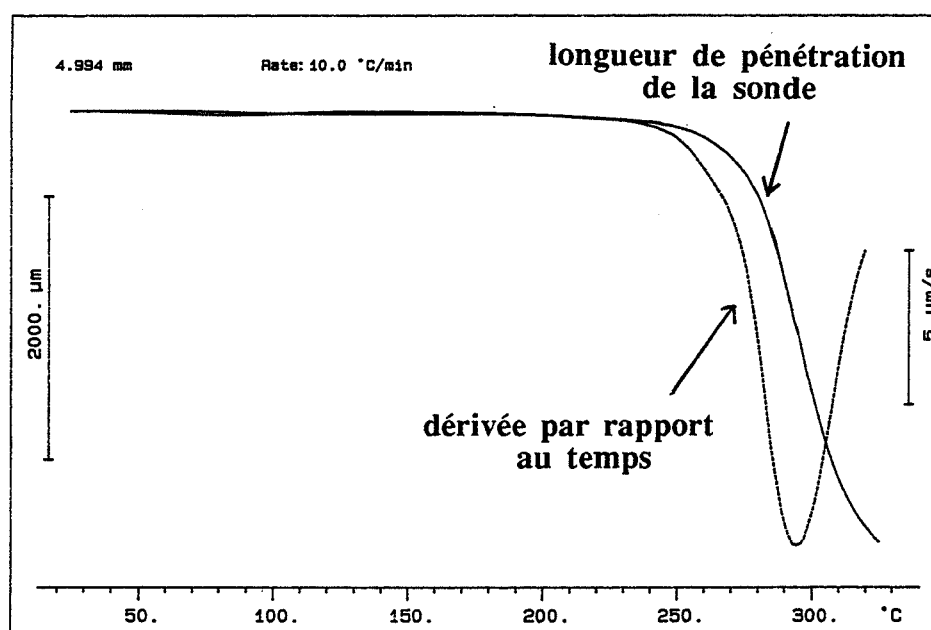


Figure III.35. Evolution de la longueur de l'échantillon en fonction de la température
Echantillon de peuplier naturel - $T_f = 340^{\circ}\text{C}$ -

La longueur de l'échantillon (qui suit la même variation que celle du module mécanique puisque nous sommes sous force constante, donc en essai de fluage) décroît faiblement jusqu'à 260 $^{\circ}\text{C}$, puis chute brutalement. La dérivée présente alors un maximum vers 280 $^{\circ}\text{C}$. Ce pic est à associer à la décomposition de la cellulose. L'échantillon à 320 $^{\circ}\text{C}$ (température finale de programmation) a perdu plus de 60 % de sa masse initiale.

Si l'on observe plus finement les variations dans les régions de basses températures, on observe un deuxième pic de la dérivée vers 100 $^{\circ}\text{C}$. (fig. III.36). Ce pic correspond à un séchage de l'échantillon. La courbe présente ensuite une légère inflexion avant de se mettre à décroître (début de ramollissement accompagné de phénomènes de décomposition thermique). Lorsqu'on arrête l'essai à 240 $^{\circ}\text{C}$, l'échantillon a perdu environ 7 % de sa masse initiale correspondant à son taux d'humidité.

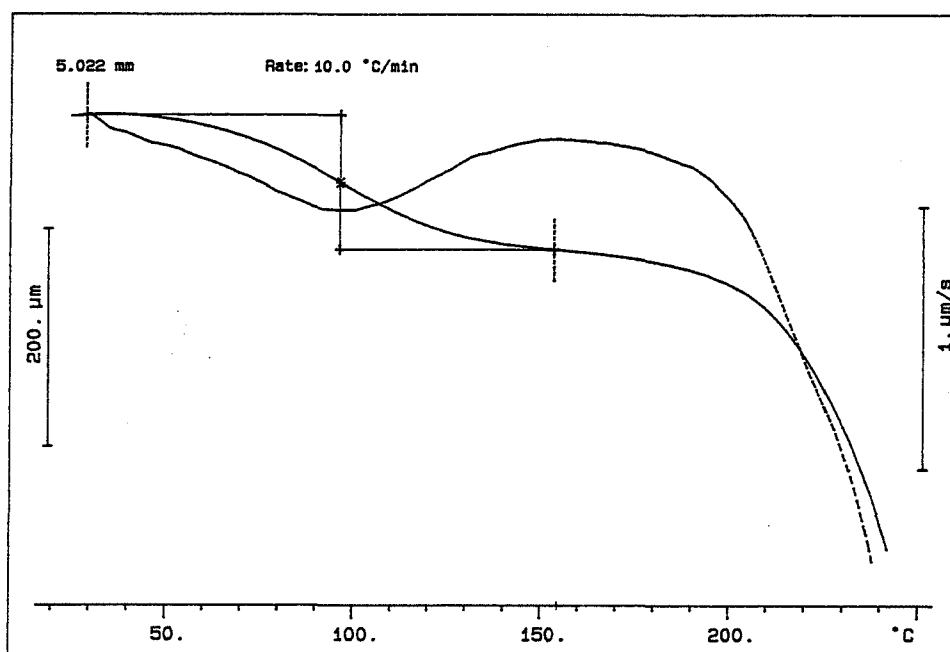


Figure III.36. Evolution de la longueur de l'échantillon en fonction de la température
Peuplier naturel - $T_f = 240\text{ °C}$

Le douglas a un comportement identique au peuplier dans les basses températures, mais la dérivée présente parfois (nous ne l'avons pas observé sur tous les échantillons) plusieurs pics de décomposition. Nous pensons que cela peut être expliqué par le passage de la sonde d'une zone de bois d'été à une zone de bois de printemps, dont les différences entre les caractéristiques mécaniques sont très marquées dans le cas du douglas (et non du peuplier). Il s'ensuit une plus grande dispersion sur les résultats des mesures.

II.2.4.2.2. Comparaison des courbes en fonction du traitement

Afin de comparer les comportements de nos bois naturels et de ceux qui avaient subi un traitement thermique, nous avons superposé sur un même graphique les courbes d'évolution de la longueur de pénétration de la sonde dans l'échantillon pour les deux essences (fig.III.37, fig III.38) et (fig.III.39, fig III.40) et pour trois températures finales 340 °C , 200 °C dans le cas du peuplier et 250 °C dans le cas du douglas (pour pouvoir mieux visualiser la zone de première transition).

De façon générale, la diminution de longueur du douglas est plus faible que celle du peuplier et déplacée vers les hautes températures. Dans les deux cas, le traitement a pour effet de réduire la diminution de longueur dans la zone de basses températures. Cette réduction ne se fait pas de façon continue, mais présente un maximum pour le peuplier traité à 240 °C et pour le douglas traité à $230\text{ °C} - 260\text{ °C}$ (les courbes sont difficiles à distinguer et se chevauchent). Cet effet est également notable dans les hautes températures, dans tous les cas et particulièrement marqué dans

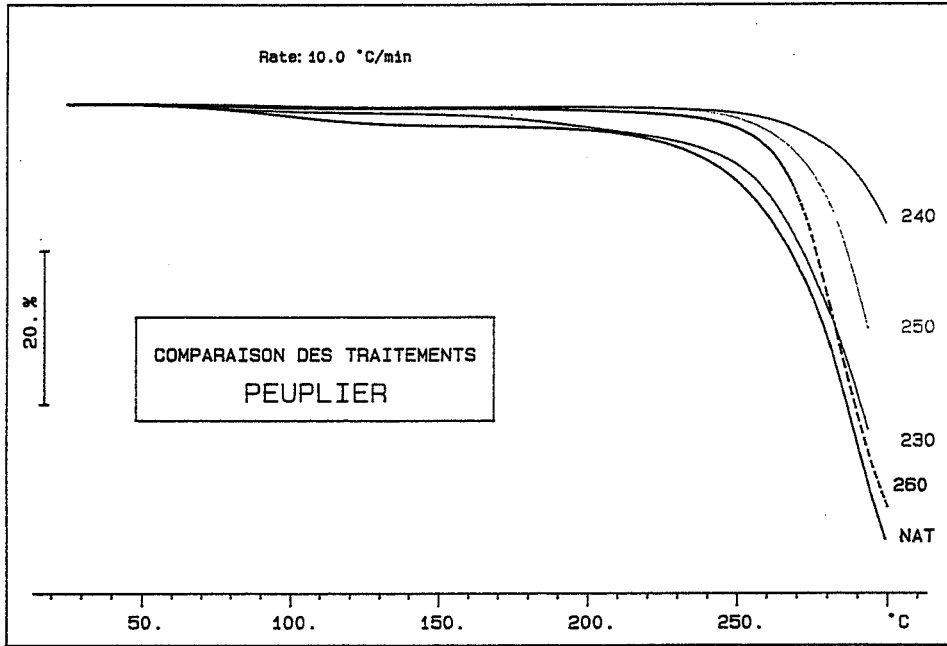


Figure III.37. Comparaison des traitements - PEUPLIER - $T_f = 340\text{ °C}$

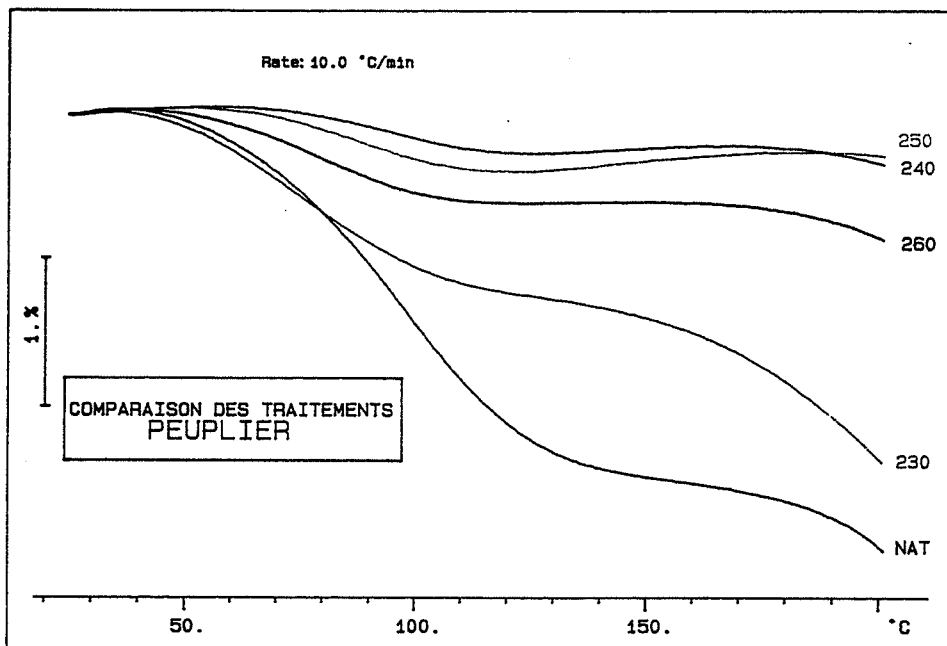


Figure III.38. Comparaison des traitements - PEUPLIER - $T_f = 200\text{ °C}$

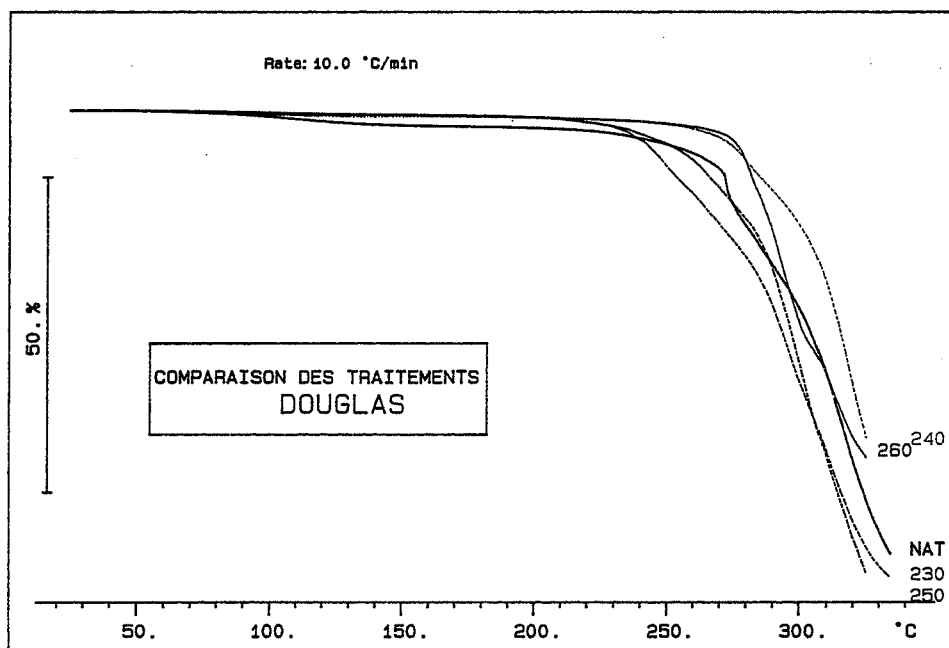


Figure III.37. Comparaison des traitements - DOUGLAS - $T_f = 340\text{ °C}$

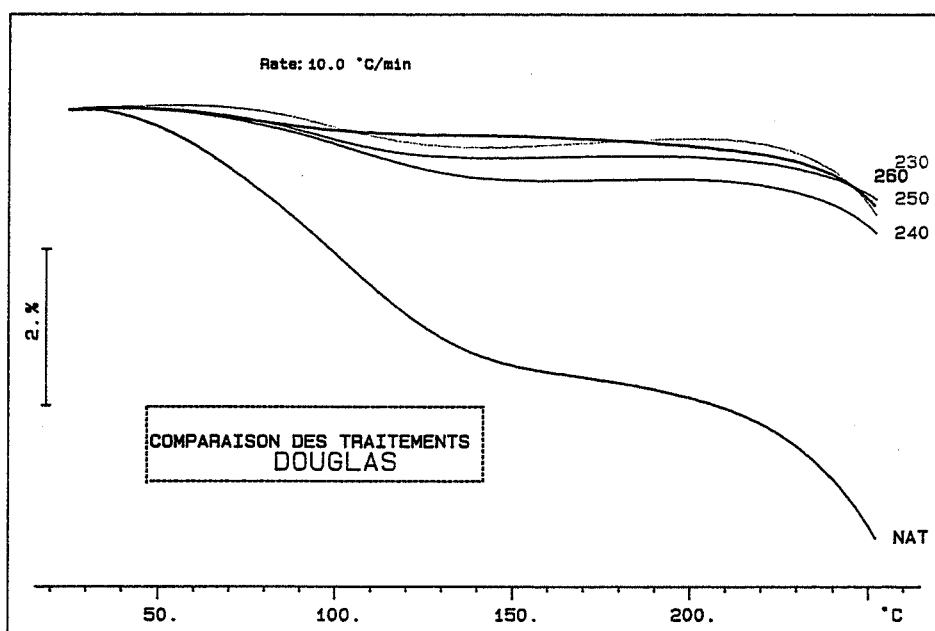


Figure III.38. Comparaison des traitements - DOUGLAS- $T_f = 250\text{ °C}$

le cas du peuplier, seulement pour les traitements 260 °C-240 °C et légèrement pour le douglas.

Pour les deux espèces, nous avons observé un phénomène d'augmentation de la longueur pour les traitements 240 - 250. Cet effet est illustré par la figure III.41 et s'est rencontré dans tous les échantillons de ces séries.

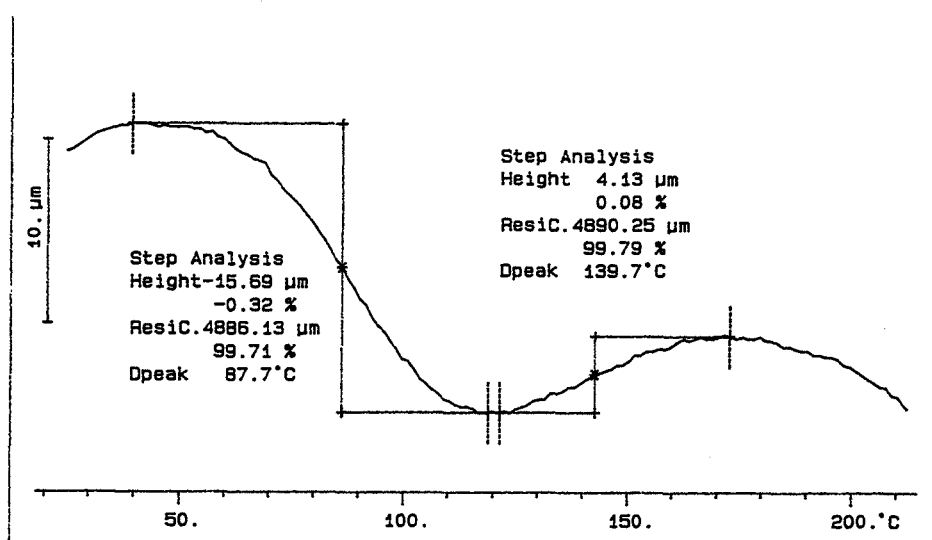


Figure III.41. Phénomène d'expansion de longueur dans le cas du peuplier traité à 240 °C

II.2.4.2.3. Evolution des températures caractéristiques en fonction du traitement

Nous avons choisi de suivre l'évolution de la température du pic que nous avons appelé pic de séchage (bien que l'étude de la littérature nous ait montré que certains auteurs le considéraient comme une transition vitreuse, cependant le fait que l'échantillon se déshydrate et perde son eau en même temps empêche théoriquement de considérer cette transition comme une transition de second ordre puisqu'il y a une variation d'enthalpie du système). Nous voulions prendre comme température de ramollissement le début (onset) de la chute brutale de la longueur, mais sa position ne s'est pas avérée reproductible. Nous avons donc choisi la température d'inflexion entre la première décroissance et la seconde. Cette température située à environ 160 °C pour le peuplier naturel et 175 °C pour le douglas naturel est proche de la température de transition vitreuse de la lignine sèche notée dans la littérature (cf § 1.5.). La dispersion des mesures sur ces températures est relativement faible pour le naturel (moins de 3 %) et augmente avec les échantillons traités (jusqu'à 12 % dans le cas du douglas traité à 260 °C). Malgré cela, les mesures sur les températures se sont avérées étonnamment reproductibles. Par contre, la variation relative de longueur à la température du pic de séchage présente des dispersions élevées (jusqu'à 37 %), mais on observe une chute de cette valeur entre bois naturel et bois traités. Les résultats sont rassemblés dans le tableau III.

SERIE	$\Delta L/L(\%)$ séchage	T (° C) séchage	T inflexion	T décomposition	$\Delta m-340^\circ C$ (%)	$\Delta m-240^\circ C$ (%)
<i>PEUPLIER</i>						
NATUREL	2,8 (14,1)	99 (3,1)	158 (2,5)	158 (2,5)	67,4 (4,2)	6,9 (10,2)
230° C	1,2 (19,8)	74 (4,2)	129 (1,6)	129 (1,6)	60,1 (2,5)	3,5 (7,8)
240° C	0,3 (16,1)	93 (6,4)	141 (2,8)	141 (2,8)	59,8 (2,4)	2,5 (9,2)
250° C	0,5 (10,4)	84 (5,2)	138 (6,5)	138 (6,5)	57,4 (11,5)	2,5 (14,3)
260° C	0,6 (16,7)	78 (8,7)	132 (3)	132 (3)	55,3 (12,5)	3,1 (6,4)
<i>DOUGLAS</i>						$\Delta m -270^\circ C$
NATUREL	2,8 (18,2)	107 (2,5)	174 (2,6)	311 (2,0)	62,5 (3,6)	11,5 (8,6)
230° C	0,6 (21,8)	103 (7,6)	165 (5,9)	312 (1,0)	55,4 (1,7)	7,5 (7,5)
240° C	0,8 (19,6)	100 (7,2)	171 (6,1)	320 (0,5)	55,5 (3,1)	5,9 (6,7)
250° C	0,6 (27,9)	98 (4,3)	154 (8,7)	312 (0,3)	55,0 (1,5)	5,9 (12,7)
260° C	0,4 (37,4)	79 (12)	142 (10)	314 (2)	52,4 (2,1)	4,7 (20,1)

Tableau III. Evolution des caractéristiques mesurées en TMA selon les traitements

Les tests statistiques de comparaison des moyennes montrent que les variations des trois températures sont significatives.

III.2.4.3. Conclusions

Lorsqu'on trace les évolutions des valeurs relatives des températures définies plus haut en fonction de la perte de masse sèche pour les deux essences (fig. III.42) et (fig.III.43), on remarque une évolution similaire à celle déjà observée sur les paramètres mécaniques déterminés par les essais précédents. La température du pic de séchage du peuplier décroît, puis réaugmente pour le traitement à 240° C pour à nouveau redécroître, par contre, celle du douglas décroît mais en deux temps. L'évolution de la température d'inflexion (à notre avis significative d'une transition vitreuse) présente pour les deux essences la même évolution déjà décrite : décroissance, légère augmentation, puis à nouveau décroissance. La température de décomposition, attribuée à la décomposition de la cellulose, augmente notablement uniquement pour ce traitement à 240° C.

La comparaison des courbes pour les différents traitements met en évidence que le fluage en compression est notablement réduit pour les bois traités. La meilleure tenue dimensionnelle est illustrée lors du passage du pic de séchage, ainsi qu'une meilleure résistance à la dégradation thermique. Les essais en TMA confirment les essais mécaniques précédents et leurs conclusions en présentant des évolutions similaires. Une fois de plus, les extrémas sont obtenus pour le traitement à 240°C. Faut-il y voir l'indice d'un changement de phase (par exemple, transition

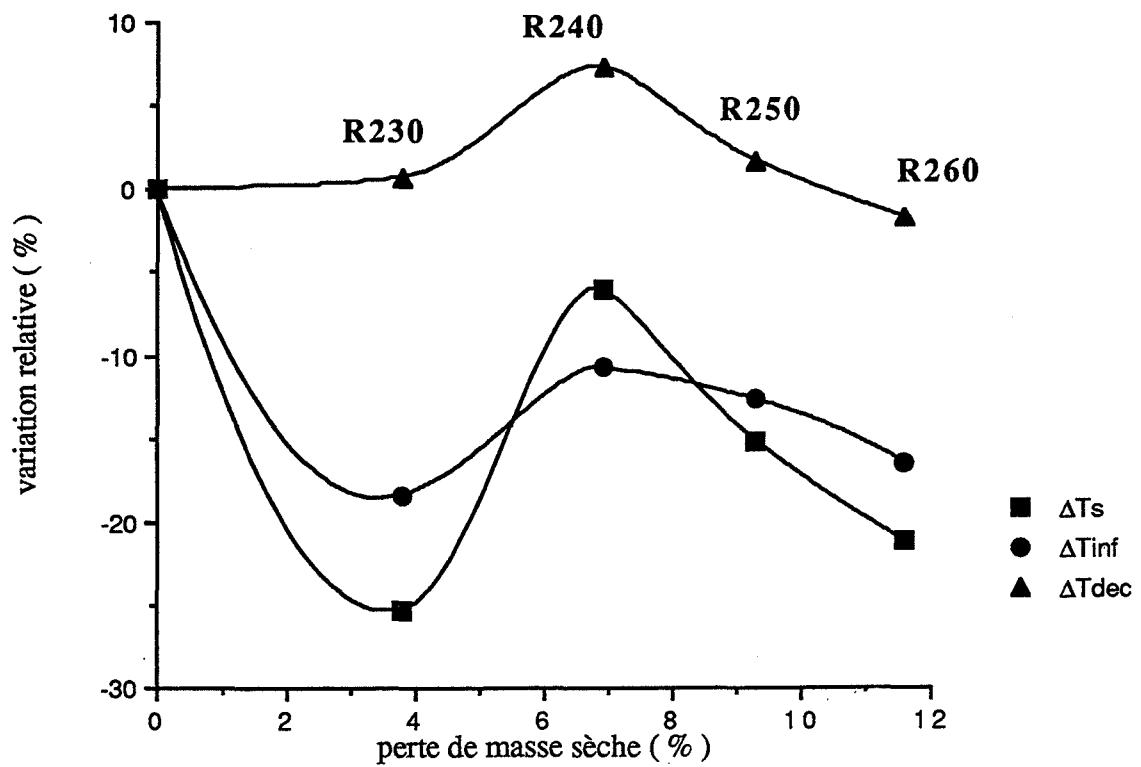


Figure III.42. Evolution des températures caractéristiques en fonction du traitement PEUPLIER

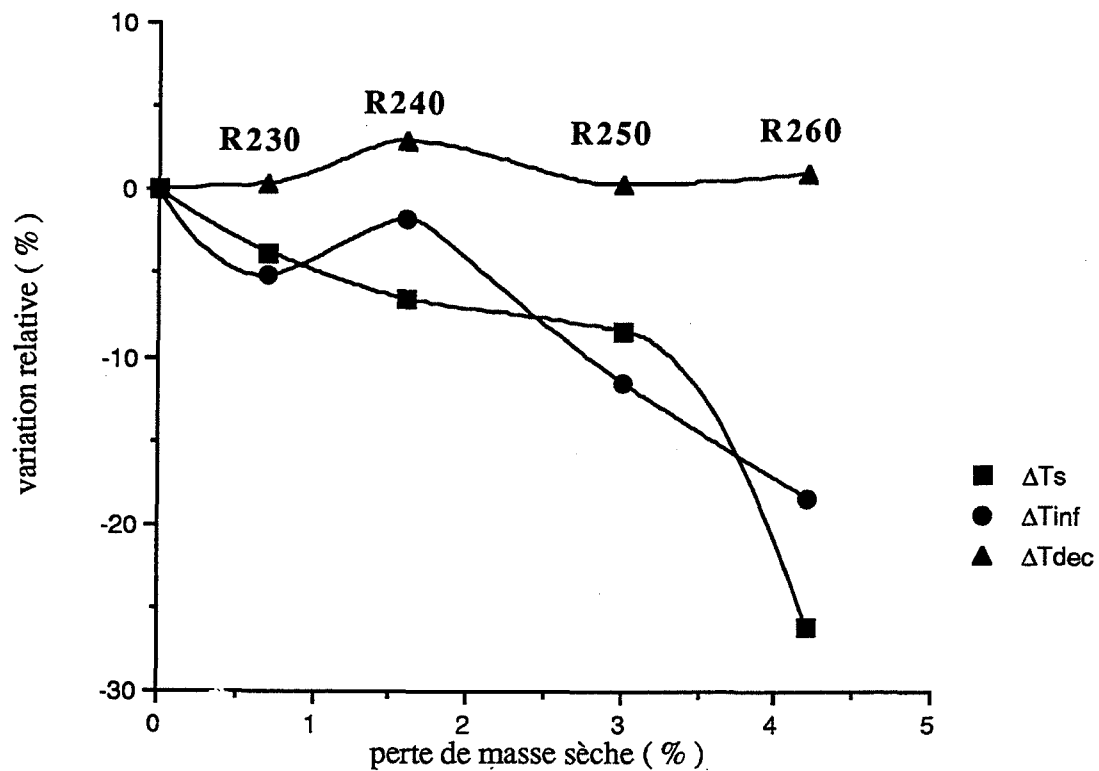


Figure III.43. Evolution des températures caractéristiques en fonction du traitement DOUGLAS

vitreuse de la cellulose) ou simplement, le reflet des modifications de structure induites par les réactions chimiques de décomposition thermique des constituants (par exemple, réticulation de la lignine). Seules des analyses physico-chimiques supplémentaires (DSC, infrarouge, diffraction X) pourront répondre de façon précise à ces questions.

Nous retiendrons cependant qu'il y a intérêt à ne pas dépasser cette température (pour 15 mn de traitement) pour obtenir des propriétés de stabilisation et de tenue en température optimales. Bien sûr, cette température n'est qu'indicative, et il faudrait plus systématiquement étudier l'équivalence entre temps de séjour et température de traitement pour donner les conditions, qui du point de vue des modifications des propriétés physico-mécaniques du matériau, sont les plus souhaitables. D'autre part, ceci dépend également des applications ultérieures du matériau où ce ne seront pas forcément les propriétés mécaniques qui conditionneront le choix, mais la densité, la couleur, les propriétés hygroscopiques, etc, surtout si le matériau de base est fragmenté et destiné à servir de charge dans des composites.

CONCLUSIONS

CONCLUSIONS

Le travail qui précède explorait deux voies en parallèle pour l'étude de la pyrolyse ménagée du bois, appelée réтификаction: d'une part, la mesure expérimentale des gradients de températures dans un cylindre de bois traité en bain d'huile et la modélisation mathématique des phénomènes de transferts de chaleur et de matière, d'autre part, la caractérisation physico-mécanique des bois traités. Menées conjointement, ces études avaient pour but de définir les paramètres optimaux de traitement et de mieux cerner les phénomènes physico-chimiques en jeu.

Il a permis de souligner l'importance des paramètres température, rayon et humidité initiale. Un modèle a été développé qui prend en compte le transfert par conduction de la chaleur, la réaction exothermique de pyrolyse et la vaporisation de l'eau contenue dans le bois. Bien qu'il reste encore de nombreuses améliorations possibles, en particulier au niveau de la méthode numérique et de l'optimisation des paramètres, ce modèle a, par sa similitude avec les résultats expérimentaux, validé les hypothèses et la mise en équations choisies. Il pourra donc servir d'outil pour la détermination des temps de séjour optimaux et la régulation du procédé.

Il est également apparu que le traitement en bain du bois très humide était très prometteur, conduisant à une plus faible génération de défaut et un gain de temps très important par rapport au séchage, tout en abaissant l'hygroscopie du matériau et en le rendant plus résistant aux attaques des microorganismes. Il serait intéressant de poursuivre cette voie en étudiant tout particulièrement quels fluides caloporteurs seraient les plus intéressants à employer. En effet, le procédé a l'avantage d'être simple à mettre en oeuvre, peu consommateur d'énergie et facilement industrialisable, à condition bien sûr de réfléchir aux éventuels problèmes de toxicité des produits utilisés et aux éventuelles incidences sur l'environnement.

L'étude des caractéristiques physico-mécaniques nous a fait développer une chaîne de mesure par spectroscopie ultrasonore qui a mis en évidence des changements fins de structure que nous n'avions pas pu déceler par microscopie électronique. Il apparaît que les essences étudiées se comportent de façon très différente et qu'il est difficile de tirer des conclusions générales. Cependant, il est apparu que, dans tous les cas, les variations n'étaient pas monotones et présentaient des alternances décroissance-croissance. Par l'observation des résultats obtenus par d'autres méthodes de caractérisation, il nous semble qu'il existe un couple température-temps de séjour où toutes les propriétés, examinées dans toutes les directions d'orthotropie, passent par un extremum. Il peut être attribué, soit à une modification de la cristallinité de la cellulose ou une modification des enroulements hélicoïdaux des microfibrilles qui se répercute, du fait de l'étroite imbrication des composants, sur tous les plans, soit à une modification de structure de la lignine dont on sait qu'elle se rigidifie par réticulation lors d'une élévation de température. Les grandes différences observées sur les comportements des différentes espèces laissent penser que les

phénomènes en jeu sont complexes et contradictoires. La décomposition thermique par déshydratation implique des ruptures de liaisons, en particulier des liaisons hydrogène extrêmement nombreuses entre les molécules de cellulose et d'hémicelluloses, mais aussi la création de nouvelles liaisons C=C et C=O du fait du départ d'eau.

Un point important est la fragilisation du matériau et la perte de sa plasticité. La principale modification semble être un affaiblissement de l'adhérence fibre-matrice, surtout visible sur le module tangentiel et le module de cisaillement dans le plan RT. La décomposition des hémicelluloses qui servaient de liant entre la cellulose et la lignine peut expliquer la moindre résistance de l'interface cellule-lamelle mitoyenne observée lors des essais de rupture. Plus cassant, plus friable, le matériau sera plus difficile à mettre en oeuvre et ne peut pas être utilisé dans des applications demandant de bonnes propriétés mécaniques. Cette remarque est surtout valable pour les bois traités en four à gaz, ceux traités en bain d'huile ne présentant pas de modifications notables de leurs caractéristiques mécaniques en flexion. Bien sûr, les résultats présentés auparavant sont partiels, tous les modes de sollicitation n'ayant pas été étudiés, ni tous les traitements possibles.

Au vu des résultats, il semblerait intéressant de déterminer de façon précise l'équivalence temps-température observée. Peut-on réellement parler d'équivalence temps-température au sens rhéologique quand le matériau subit des transformations chimiques ? En effet, l'étude des transformations chimiques montre que la conjugaison de la température et du temps de traitement joue de façon complexe sur les chemins réactifs et le produit final. Des études supplémentaires sont indispensables pour mieux comprendre le rôle de ces paramètres.

D'autre part, la méthode de spectroscopie ultrasonore peut être nettement améliorée par un traitement approprié des signaux et fournir beaucoup plus d'informations. Elle devrait pouvoir également permettre de suivre en continu le procédé, servant ainsi de contrôle. Pour cela, un four expérimental a été mis au point au laboratoire. Equipé d'un capteur ultrasonore résistant à la température, il permettrait d'étudier in situ par une méthode d'écho les modifications avec la température d'une impulsion se propageant dans la direction L.

De cette étude, nous retiendrons les points suivants:

- intérêt du traitement en bain des bois humides;
- intérêt à traiter vers 240°C (meilleure régulation en température, exothermicité moindre, optimum des propriétés)
- fragilisation du matériau, mais meilleure stabilité dimensionnelle et diminution du fluage ;
- nécessité de trouver un compromis entre amélioration des propriétés hygroscopiques et chute des résistances mécaniques.

Comme nous l'avons déjà fait remarquer, l'appréciation des propriétés dépend de l'application que l'on a choisie de développer. Les exigences ne sont pas les mêmes pour une charpente que

pour une fenêtre ou un meuble de cuisine. Pour des essences nobles, le traitement ne présente pas beaucoup d'intérêt, surtout s'il abaisse leurs caractéristiques mécaniques. Il est par contre particulièrement adapté à des essences peu valorisées (exemple: le peuplier) car trop sensibles à l'humidité. De plus, le traitement de réticulation ouvre la possibilité d'utiliser des déchets traités de bois sous forme de sciure ou de copeaux dans l'industrie du composite bois, panneaux, contreplaqués, ou comme charge dans des résines polymères, d'autant plus qu'il supprime tous les inconvénients liés au caractère hygroscopique du matériau.

BIBLIOGRAPHIE

OUVRAGES GENERAUX

- Bodig J., Jayne B.A, 1982, Mechanics of wood and wood composites, ed. Van Nostrand Reinhold Company, New-York.
- Fengel D., Wegener G., 1984, Wood - Chemistry, Ultrastructure, Reactions, ed. Walter de Gruyter, Berlin.
- Guitard D., 1987, Mécanique du matériau bois et composites, ed. Cepadues, Toulouse.
- Kollmann F.F.P, Côté W.A , 1968, Principles of wood science and technology I. Solid wood, Ed Springer-Verlag, Berlin.
- Rowell R., 1984, The chemistry of solid wood, ed. Rowell, Advances in Chemistry Series, 207, American Chemical Society, Washington .
- Sjöström E., 1981, Wood chemistry: fundamentals and applications , ed. Academic Press, New-York.
- Stamm A.J, 1964, Wood and Cellulose Science, The Ronald Press Co, New York.
- U.S department of Agriculture , 1974 , Wood handbook : wood as an engineering material, Forest Service Agriculture.

REFERENCES

- Adler E., 1977, *Lignin chemistry - past, present and future.*, Wood Sci.Technol., **11**: 169-218.
- Adler L, Fitting D.N, 1980, Ultrasonic spectral analysis for Non-Destructive Evaluation, Academic Press, New York.
- Adler L., 1991, *Material characterization by ultrasonic spectroscopy* , dans Acoustic sensing and probing, Fourth Course of the International School on Physical Acoustics,pp 3-20, ed. Alippi, World Scientific.
- Alves S.S., Figueiredo, 1988, *Pyrolysis kinetics of lignocellulosic materials by multistage isothermal thermogravimetry*, **13**:123-134.
- Alves S.S., Figueiredo J.L., 1989, *Kinetics of cellulose pyrolysis modelled by three consecutive first-order reactions*, J.of Analytical and Applied Pyrolysis, **17**:37-46.
- Alves S.S., Figueiredo J.L, 1989, *A model for the pyrolysis of wet wood*, Chem.Eng.Sci., **44** (12): 2861-2869.
- Anfray B., 1985, Etude de l'atténuation des ondes ultrasonores de volume et de surface appliquée à la caractérisation des matériaux., rapport de fin de contrat DRET n° 83/1439.
- Armines,1985, *Nouveau matériau lignocellulosique thermocondensé, procédé du four pour l'obtenir*.Brevet Fr N° 85-18765
- Armines, 1986, *Procédé de fabrication d'un matériau lignocellulosique et matériau obtenu par ce procédé*.Brevet Fr N° 86- 14138

- Avat F., 1989, Nature et rôle des extractibles dans la réтификаction du bois, DEA EMSE , St-Etienne.
- Avat F., Etude des mécanismes de pyrolyse basses températures du bois. Caractérisation physico-chimique du matériau, Thèse E.M.S.E (en préparation).
- Bach L., 1965, Non-linear mechanical behaviour of wood in longitudinal tension, Ph.D Dissertation, State University College of Forestry , Syracuse.
- Back E.L., 1967, *Thermal auto crosslinking in cellulose material*, Pulp and Paper Magazine of Canada, avril 1967, pp 165-171.
- Back E.L., Salmén N.L., 1982, *Glass transitions of wood components hold implications for molding and pulping processes*, Tappi, 65(7):107-110.
- Bamford C.H., Crank J., Malan D.H, 1946, *The combustion of wood.*, Proc.Cambridge Phil.Soc, 42:166-182.
- Barrett J.D. , 1973 , Theoretical models of wood shrinkage and elasticity, PhD Dissertation, University of California, Berkeley.
- Bartholin M.C., Besset H., Bourgois J., Guyonnet R.,1986, Le bois torréfié : étude du mécanisme réactionnel en vue d'une meilleure spécification du produit, Rapport AFME n°13-5.
- Basilico C., 1985, Le séchage convectif à haute-température du bois massif. Etude des mécanismes de transfert de chaleur et de masse., Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Bazhenov V.A., 1961, Piezoelectric properties of wood, ed. Consultants Bureau Enterprises, New-York.
- Beall F.C.,Eickner M.W, 1970, Thermal degradation of wood components: a review of literature, USDA Forest Service Research Paper, FPL 130.
- Beall F.C., 1971, *Differential calorimetric analysis of wood and wood components*, Wood Sci.Technol., 5:159-175.
- Beall F.C., 1987, *Preliminary investigation of acoustic emission from wood during pyrolysis and combustion*, J. of Acoustic Emission, 6(3):151-155.
- Belleville P., 1982, Modélisation de la cinétique de pyrolyse des particules de bois de taille importante et du bilan matière de la gazéification à l'oxygène pur, Thèse Université de Technologie de Compiègne.
- Blackshear P.L., Murty-Kanury A., 1970, *On the combustion of wood I: a scale effect in the pyrolysis of solids*, Comb.Sci .Technol., 2:1-4.
- Bilbao R., Millera A., Arauzo J.,1989, *Thermal decomposition of lignocellulosic materials : influence of the chemical composition*, Thermochemica Acta, 143:149-159.
- Böhnke I., 1989, Contribution à l'étude des propriétés physico-chimiques et mécaniques du bois réifié, DEA E.N.S.M.S.E.

- Böhnke I., Bucur V., Guyonnet R., 1990, *Ultrasonics for the characterization of wood properties before and after thermal treatments*, dans Proceedings of International congress on recent developments in air- and structure-borne sound and vibration, pp 587-592., 6-8 mars 1990, Auburn, USA,**
- Böhnke I., Guyonnet R., 1991, *Spectral analysis of ultrasonic waves for the characterization of thermally treated wood*. dans Conference Proceedings of Ultrasonics International 91, Le Touquet, 1-4 juillet 1991, pp 499-502.**
- Böhnke I., 1991, Etude des traitements thermiques du bois en vue de l'obtention de matériaux à propriétés améliorées., Rapport final Bourse Recherche et Technologie de la Région Rhône-Alpes.**
- Böhnke I., Guyonnet R., 1992, Etude des caractéristiques ultrasonores du bois d'épicéa. Rapport de fin de contrat MRT, n° 89 A 0208.**
- Bourbié T., Coussy O., Zinszner B., 1986, Acoustique des milieux poreux, Technip, Paris.**
- Bourgeois J.P., Libanati C., Gueusquin P., Renon H., 1986, Bois torréfié : procédé, Rapport final AFME.**
- Bourgeois J., Guyonnet R., 1988, *Characterization and analysis of torrefied wood*, Wood Sci. Technol, 22:143-155.**
- Bourgeois J., Bartholin M.C., Guyonnet R., 1989, *Thermal treatment of wood: analysis of the obtained product*, Wood Sci. Technol., 23:303-310.**
- Brown D.J., 1982, *The questionable use of the Arrhenius equation to describe cellulose and wood pyrolysis*, Thermochemica Acta, 54:377-379.**
- Browne F.L., 1958, Theories on the combustion of wood and its control, US Forest Prod. Lab., rep. 2136, Madison.**
- Browning B.L., 1963, *The composition and chemical reactions of wood*, in The Chemistry of Wood, pp 57-101, ed. Browning, Interscience, New-York.**
- Bucur V., 1984, Ondes ultrasonores dans le bois. Caractérisation mécanique et qualité de certaines essences de bois, Thèse I.S.M.C.M., Saint-Ouen.**
- Bucur V., Archer R.R., 1984, *Elastic constants for wood by an ultrasonic method*, Wood Sci. Technol., 18:255-265.**
- Bucur V., 1987, *Wood characterization through ultrasonic waves*, dans Ultrasonic methods in evaluation of inhomogeneous materials, Alippi A., Mayer W.G. (Eds), pp 323-333, Nyhoff Publ.**
- Bucur V., Perrin J.R., 1988, *Ultrasonic waves- wood structure interaction*, dans Proceedings of the Institute of Acoustics, vol 10, part 2, pp 199-206, Edinburgh.**
- Bucur V., 1988, *Wood structural anisotropy estimated by acoustic invariants*, IAWA Bulletin, 9(1):67-74.**

- Burmester A., 1974, *Dimensionsstabilisierung von Buchenholz durch Wärmebehandlung unter Druck*, HOB, 1:22-25.
- Carrabin G., 1991, *Les nouveaux produits à base de bois*, Technica, 471: 23-25.
- Cave I.D., 1972, *Swelling of a fibre reinforced composite in which the matrix is water reactive*, Wood Sci.Technol., 6 : 157-161.
- Champetier G., Monnerie L., 1969, Introduction à la chimie macromoléculaire, ed. Masson, Paris.
- Charuel R., Rosselet J.C., Serra-Tosio J.M.,1980, Contribution à la mesure et à l'étude des propriétés thermiques du bois, Ecole Française de Papeterie.
- Chevalier Y., 1989, *Testing composite materials by propagation of ultrasonic waves*, dans Actes du colloque AMAC-GAMAC Caractérisation des matériaux composites, pp 178-193, Saint-Etienne, 1989.
- Chornet E., Roy C.,1980, *Compensation effect in the thermal decomposition of cellulosic materials*, Thermochemica acta, 42:389-393.
- Chow S.Z.,1971, *Infrared spectral characteristics and surface inactivation of wood at high temperatures*, Wood Sci.Technol., 5:27-39.
- Chow S.Z., Pickles K.J., 1971, *Thermal softening and degradation of wood and bark*, Wood and Fiber, 3:166-178.
- Christensen A.W., 1991, *How overdrying wood reduces its bonding to phenolformaldehyde adhesives. A critical review of the literature. Part II. Chemical reactions.*, Wood Fiber Sci, 23 (1):69-84.
- Comité du Bois, 1985, Tendances et perspectives du bois en Europe jusqu'à l'an 2000 et au-delà. Projet de rapport O.N.U - F.A.O, Commission économique pour l' Europe, Genève.
- Cucurratchy J., 1974, Sur la détermination des constantes élastiques des matériaux composites par une méthode ultrasonore., Thèse Université de Bordeaux I.
- DeGroot W.F., Pan N.P, Rahman H.D, Richard G.N., 1988, *First chemical events in the pyrolysis of wood*, J. of An.Ap.Pyrolysis, 13:221-231.
- Dieulesaint E., Royer D., 1974, Ondes élastiques dans les solides. Application au traitement du signal., Masson, Paris.
- Dinwoodie J.M, 1975, *Timber - a review of the structure-mechanical property relationship*, J.of Microscopy, 104:1-32.
- Drain-Josserand A., 1988, Etude expérimentale des mouvements de l'eau dans l'aubier de pin sylvestre dans le domaine hygroscopique. Modélisation et simulation., Thèse Université de Saint-Etienne.
- Dumon R.,1980, La forêt . Source d'énergie et d'activités nouvelles, ed. Masson, Paris.
- Dunlap F., 1912, *The specific heat of wood*, U.S.Dep.Agr. Bull., n° 110 (cité dans Kollmann).

- Every A., Sachse W., 1990, *Determination of the elastic constants of anisotropic solids from acoustic wave group velocity measurements*, Physical Review B., (42) 13: 8196-8205.
- Fairbridge C., Ross R.A, 1978, *The thermal reactivity of wood waste systems*, Wood Sci. Technol., 12:169-185.
- Fengel D., 1971, *The physics and chemistry of Wood Pulp Fibres* , Tappi , 8: 83-97.
- Fideler B., 1983, Caractéristiques mécaniques du bois. Méthodes dynamiques de mesures des constantes élastiques, Mémoire C.N.A.M, Paris.
- Foudjet A., 1986, Contribution à l'étude rhéologique du matériau bois, Doctorat d'Etat, Université Claude Bernard (Lyon I).
- Funaoka M., Kako T., Abe I.,1990, *Condensation of lignin during heating of wood*, Wood Sci. Technol., 24:277-288.
- Genevaux J.M, Guitard D., 1987, *Comportement différé du matériau bois. Choix et identification d'un modèle* , dans Actes du Colloque Science et Industrie du bois - Nancy, pp 333-340.
- Gericke O.R, 1970, *Ultrasonic spectroscopy*, dans Research Techniques in Non-Destructive Testing, ed. Sharpe,pp 31-61, Academic Press, London.
- Giebeler E., 1983, *Dimensionsstabilisierung von Holz durch eine Feuchte/Wärme/Druck-Behandlung*, Holz as Roh- und Werkstoff,41: 87-94.
- Goring D.A.I., 1963, *Thermal softening of lignin, hemicellulose and cellulose*, Pulp Paper Mag. Can., 64: T517-T527 .
- Goring D.A.I, 1989, *The lignin paradigm* , in Lignin- Properties and Materials, pp 2-10, Ed Glasser & Sarkanen, American Chemical Society, Washington.
- Goupy J., 1988, La méthode des plans d'expériences, Dunod, Paris.
- Gril J., 1988, Une modélisation du comportement hygro-rhéologique du bois à partir de sa microstructure , Thèse de Doctorat de l'Université Paris VI.
- Grossman P.U.A, 1976, *Requirements for a model that exhibits mechanosorptive behaviour*, Wood Sci. Technol., 10 : 163-168.
- Hadj Hamou A., 1985, Mesures des constantes elastiques du bois , Etude générale CTBA,Paris.
- Halpin J.C., Pagano N.J., 1968, *Observations on linear anisotropic viscoelasticity*, J. Composite Mat., 2:68-80.
- Havens J.A., Hashemi H.T., Brown L.E., Nelker J.R., 1972, *A mathematical model of the thermal decomposition of wood* , Comb. Sci.Technol., 5:91-98.
- Hearmon R.F.S, 1948, The elasticity of wood and plywood. Forest Prod. Res. Special report n° 7, H.M. Stationary Office, London.
- Hillis W.E., 1975, *The role of wood characteristics in high temperature drying* , J. of the Institute of Wood Sci., 7 (2) : 60-67.

- Hillis W.E., Rozsa A.N., 1978, *The softening temperatures of wood*, Holzforshung, 2:68-73.
- Hirata T., 1974, *Effects of inorganic salts on pyrolysis of wood and wood cellulose measured with thermogravimetric and differential thermal analysis technics.I. Kinetics of the pyrolysis of untreated wood and cellulose in vacuo*, Bull. of the Gov. Forest Exp.Sta., 263:1-16.
- Hosten B., Castagnede B., 1983, *Mesure des constantes élastiques du bois à l'aide d'un interféromètre ultrasonore numérique et leur optimisation*, C.R. Acad. Sci. de Paris, T 296, série II, pp 1761-1764.
- Hosten B., Roux J., Castagnede B., Deschamps M., 1985, *Caractérisation mécanique des solides par spectro-interférométrie ultrasonore.*, Revue Phys. Appl., 20:351-358.
- Huet C., 1988, *Quelques aspects du comportement thermo-hygro-viscoélastique du bois*, pp 104-118, Actes du colloque Comportement mécanique du bois, Bordeaux, juin 1988.
- Irvine G.M., 1984, *The glass transitions of lignin and hemicelluloses and their measurement by differential thermal analysis*, Tappi, 67(5): 118-121.
- Janin G., Nepveu G., 1980, *La qualité des bois*, dans Les Polymères Végétaux, pp 319-340, Ed Monties, Bordas, Paris.
- Joly P., More-Chevalier F., 1980, Théorie, Pratique et économie du séchage des bois, ed. Vial, Dourdan.
- Joseleau J.P., 1980, *Les hémicelluloses*, dans Les Polymères Végétaux, pp 87-121, Ed Monties, Bordas, Paris.
- Kamioka H., 1988, *Effects of ultrasonic bonding materials on velocity and attenuation of sound in red lauan wood*, Jap.J. of Applied Phys., 27(2):188-191
- Kansa E.J., Perlee H.E, Chaiken R.F., 1977, *Mathematical model of wood pyrolysis including internal forced convection*, Comb.Flame, 29:311-324.
- Kelley S.S., Rials T.G., Glasser W.G., 1987, *Relaxation behaviour of the amorphous components of wood*, J. of Mat.Sci., 22:617-624.
- Kent A.C., Rosen H.N., Hari B.M., 1981, *Determination of equilibrium moisture content of yellow-poplar sapwood above 100° C with the aid of an experimental psychrometer*, Wood Sci.Technol., 15:93-101.
- Kerr A.J., Goring D.A.I., 1975, *The ultrastructural arrangement of the wood cell wall*, Cellulose Chem. and Technol., 9: 563-573.
- Khébibèche M., Dirol D., Le Govic C., 1991, Qualification des propriétés du bois rétifé pour emploi en menuiseries industrielles., Rapport CTBA.
- Kollmann F., Scheider A., 1964, Untersuchungen über den Einfluß von Wärmebehandlungen im Temperaturbereich bis 200°C und von Wasserlagerung bis 100° C auf wichtige physikalische und physikalischchemische Eigenschaften des Holzes, Forschungsber Nordrhein-Westfalen n°1399, Westdeuscher Verlag, Köln, Opladen.

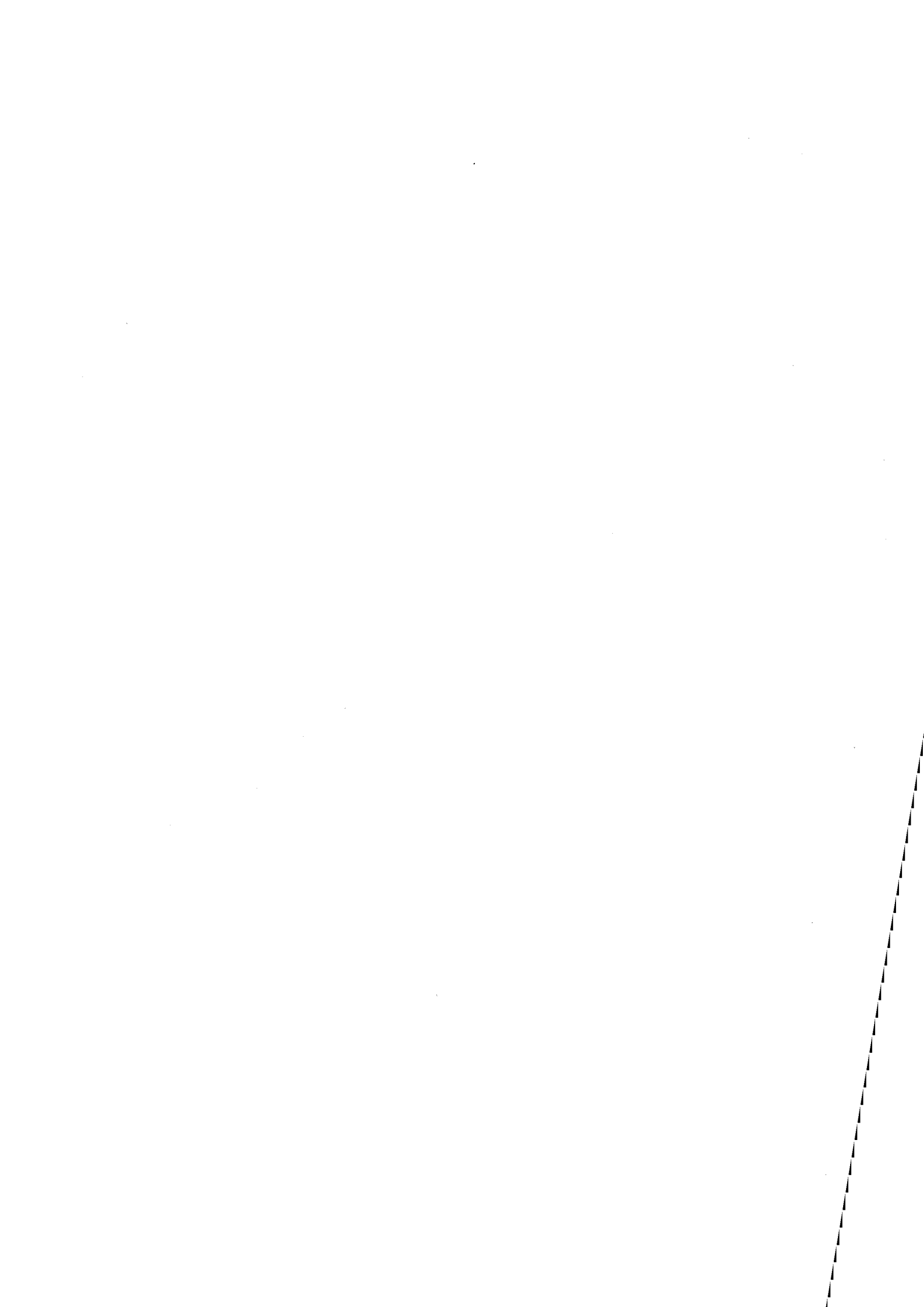
- Krautkramer J., Krautkramer H., 1977, Ultrasonic testing of materials, Springer Verlag, Heidelberg.
- Kung H.C., 1972, *A mathematical model of wood pyrolysis*, Comb.Flame, **18**: 185-195.
- Kung H.C., Kalelkar A.S., 1973, *On the heat of reaction in wood pyrolysis*, Comb.Flame, **20**:91-103 .
- Lapierre C., Monties B., Vassal-Gonthier A., Dworkin A., 1986, *Differential calorimetric study of pine and poplar lignins between 300 and 525 °K*, J. of Applied Polymer Science, **32**:4561-4572.
- Le Govic C., Trenard Y., Huet C., 1986, *Symétries matérielles du matériau bois : morphologie et conséquences physiques*, dans Huet C., Bourgoin D., Richemond S., Rhéologie des matériaux anisotropes, Comptes rendus du 19° Colloque du Groupe Français de Rhéologie, Paris, Nov 1984.
- Le Govic C., Felix B., Hadj Hamou A., Huet C., 1987, *Mise en évidence d'une équivalence temps-température et modélisation du fluage du bois*, dans Actes du 2° Colloque " Sciences et Industries du bois ", pp 349-356, ARBOLOR, Nancy, Avril 1987.
- Levêque F., Peguret A., 1988, Forêts et industries du bois. Structures et performances, Ed Economica, Paris.
- Maa P.S., Bailie R.C., 1973, *Influence of particle sizes and environmental conditions on high temperature pyrolysis of cellulosic material I Theoretical*, Comb.Sci.Technol.,**7**:257-269.
- Maku T., 1954, *Studies on the heat conduction in wood*. Wood Res.Bull. N° 13, Wood Res.Inst.Kyoto University, Kyoto, Japon.(cité dans Kollmann).
- Madorsky S.L., Hart V.E Straus S., 1958, *Thermal degradation of cellulosic materials*, J.Res.Nat.Bur. Standards, **60**:343-349.
- Mariaux A., 1983, *L'ultrastructure du bois*, dans " Ecole d'hiver sur le bois ", ARBOLOR, Albe, janv.1983.
- Mark R.E., 1967, Cell wall mechanics of tracheids, Yale University Press, New Haven.
- Mason W.P., Mc Skimin H.J., 1948, *Energy losses of sound waves in metals due to scattering and diffusion.*, J. of App. Physics ,**19**:940-946.
- Mitchell R.L., Seborg R.M., Millett M.A., 1953, *Effect of heat on the properties and chemical composition of Douglas-fir wood and its major components*, Forest Prod.J, **3**(4):38-42.
- Monties B., 1980, *Les lignines*, dans Les Polymères Végétaux, pp 122-155, ed Monties, Bordas, Paris.
- Murty-Kanury A., Blackshear P.L, 1970, *Some considerations pertaining the problem of wood burning*, Comb. Sci. Technol., **6**: 339-355.
- Murty-Kanury A., 1972a, *Rate of burning of wood(a simple thermal model)*, Comb. Sci. Technol., **5**: 135-146.

- Murty-Kanury A., 1972b, *Thermal decomposition kinetics of wood pyrolysis*, Comb.Flame, **18**:75-83.
- Murty-Kanury A., 1974, *Mass regression in the pyrolysis of pine wood macrocylinders in a nitrogen atmosphere- an experimental study*, Comb.Sci.Technol., **9**:31-36.
- Nakao T, Okano T., Asano I, 1983, *Effects of heat treatment on the loss tangent of wood.*, Mokusai Gakkaishi, **29**(10):657-662.
- Navi P., 1989, *Three dimensional modeling of the wood microstructure for the prediction of fiber elastic properties* , pp 69- 80, Actes du Colloque Comportement mécanique du bois, Bordeaux.
- Nebesarova I., 1992, Influence du procédé de réification dans l'élaboration d'un composite bois-polymère., DEA E.M.S.E .
- Ono T., Norimoto M., 1984, *On physical criteria for the selection of wood for soundboards of musical instruments.*, Rheol. Acta **23**: 652-656.
- Ono T., Norimoto M., 1985, *Anisotropy of Dynamic Young's modulus and internal friction in wood*, Jap.J. Applied Phys., **24** (8) : 960-964.
- Parker W.J., LeVan S.L, 1989, *Kinetic properties of the components of douglas-fir and the heat of combustion of their volatile pyrolysis products*, Wood and fiber Sci., **21**(3):289-305.
- Papadakis E.P., 1966, *Ultrasonic diffraction loss and phase change in anisotropic materials.*, J.A.S.A., **40**(4):863-876.
- Papadakis E.P.,1975, *Ultrasonic diffraction from simple apertures with application to pulse measurements and crystal physics*, dans Physical Acoustics, ed. Mason, Vol 4-B, pp 269-328.
- Papadakis E.P., 1990, *The measurement of ultrasonic velocity*, pp 81-106, et *The measurement of ultrasonic attenuation*, pp 107-155, dans Ultrasonic Measurement Methods, eds Thurston & Pierce, Physical Acoustics, vol XIX, Academic Press, London.
- Pentoney R.E., Davidson R.W., 1962, *Rheology and the study of wood*, Forest Prod.J., **12**:243-248.
- Poliszko S., 1984, *Anisotropy of dynamic wood viscoelasticity*, in Huet C., Bourgoïn D., Richemond S., Rhéologie des matériaux anisotropes, Comptes rendus du 19^o Colloque du Groupe Français de Rhéologie, Paris, Nov 1984.
- Quentin G., 1987, *Resonance spectroscopy*, dans Ultrasonic methods in evaluation of inhomogeneous materials, Alippi A., Mayer W.G. (Eds), pp 181-195, Nyhoff Publ.
- Roberts A.F., 1970, *A review of kinetics data for the pyrolysis of wood and related substances*, Comb.Flame, **14**:261-272.

- Roberts A.F., 1971, *Thermal decomposition of wood in a inert atmosphere*, pp 108-111, 13th Int symp. on Combustion, the combustion institute, Pittsburg.
- Rowell R.M., 1990, *Chemical modification of cell wall polymers as potential treatments of archeological wood*, pp 421-431, in Archeological wood, Advances...
- Salmén L., Kolseth P., De Ruvo A., 1985, *Modeling the Softening Behaviour of Wood Fibres*, J.Pulp and Paper Sci. **11**(4) : J102-107.
- Sarkanen K.V., Ludwig C.H. (Eds), 1971, Lignins: Occurrence, formation, structure and reactions., Wiley-Interscience, New-York.
- Schaffer E.L., 1973, *Effect of pyrolytic temperatures on the longitudinal strength of dry Douglas-fir*, Journal of testing and evaluation, **4** (1):319-329.
- Scott W.R, Gordon P.F., 1977, *Ultrasonic spectrum analysis for nondestructive testing of layered composite materials*, J.Acoust.Soc.Am., **62**(1):108-116.
- Shafizadeh F., De Groot W., 1977, *Combustion characteristics of cellulosic fuels*, dans Thermal uses and properties of carbohydrates and lignins, eds Shafizadeh, Sarkanen, Tillman, pp 1-17, Academic Press, London.
- Schniewind A.P., 1968, *Recent progress in the study of the rheology of wood*, Wood Sci. Technol., **2**: 188-206.
- Schniewind A.P., Barrett J.D., 1972, *Wood as a linear orthotropic viscoelastic material*, Wood Sci. Technol. **6**: 43-57.
- Schiewind A.P., 1980, *Mechanical behavior and properties of wood*, J.Educ. Modules for Mater. Sci. and Eng. **2**(4) : 861-906.
- Skaar C., 1976, *Effect of the rate of degradation and reduction in hygroscopicity of wood*, in Proceedings of the Research Conference on High-Temperature drying effects on mechanical properties of softwood lumber, pp 113-127, UDSA Forest Service Madison.
- Skaar C., 1988, Wood-water relationships, ed. Springer-Verlag, Berlin.
- Spolek G.A., A model of simultaneous convective, diffusive and capillary heat and mass transport in drying wood, Ph D Dissertation, Washington.
- Stamm A.J., Horace K.Burr, Kline A.A., 1946, *Staybwood : heat-stabilized wood*, Ind. Eng.Chem.,**38**(6): 631-634.
- Stamm A.J., 1956, *Thermal degradation of wood and cellulose*, Ind.Eng. Chem.,**3**:414-417.
- Stamm A.J., 1962, *Stabilization of wood*, Forest Prod. J., **21**:158-161.
- Stamm A.J., 1967a, *Movements of fluids in wood.Part I.Flow of fluids in wood*, Wood Sci.Technol., **1**: 122-141.
- Stamm A.J., 1967b, *Movements of fluids in wood.Part II.Diffusion*, Wood Sci.Technol., **1**: 205-230.
- Takahashi N., Koshijima T., 1988, *Molecular properties of lignin-carbohydrate complexes from beech (Fagus Crenata) and pine (Pinus Densiflora)*, Wood Sci.Technol., **22** : 177-189.

- Tang W.K., Neill W.K., 1964, *Effect of flame retardants on pyrolysis and combustion of alpha-cellulose*, J.Poly.Sci., Part C, 6:65-81.
- Tang W.K., 1967, Effect of inorganic salts on pyrolysis of wood, alpha-cellulose and lignin determined by dynamic thermogravimetry, US Forest Serv. Res Pap., FPL 71, Madison.
- Tinney E.R., 1965, *The combustion of wooden dowels in heated air*, pp 925-930, in Proceedings of the tenth Symp. on combustion, the Combustion Institute.
- Thomas R.J., 1980, *Wood anatomy and ultrastructure*, J. of Educ. Modules for Mat.Sci. and Eng., 2(1):45-90.
- Thomson W.S., Stevens R.S., 1976, *Influence of thermal treatments on the mechanical and chemical properties of wood: a review of research at the Mississippi Forest Products Laboratory*, in Proceedings of the Research Conference on High Temperature drying effects on mechanical properties of softwood lumber, Madison.
- Truell R., Elbaum C., Chick B., 1969, Ultrasonic methods in solid state physics, Academic Press, London.
- Vary A., 1980, *Ultrasonic measurements of material properties*, pp 160-199, in Research Techniques in Non-Destructive Testing, vol 14, ed Sharpe R.S., Academic Press, London.
- Vinh T., 1981, *Mesures ultrasonores de constantes élastiques de matériaux composites*, Sciences et Techniques de l'armement, vol 54, 2ème fascicule, pp 265-289.
- Vinh T., 1990, Essais dynamiques des matériaux viscoélastiques, Session de perfectionnement, ISMCM, Saint-Ouen.
- Vovelle C., Vovelle C., Delfau J.L., 1986, *Comparative study of the calculation techniques used for the determination of kinetics parameters of wood and cellulose degradation from TGA*, Journal de Chimie-Physique, 83(3), 191-196.
- White H.A., Arbor A., 1944, *Process for the partial pyrolysis of wood and product of the same* Patent 2,360,604, US Patent Office
- Wichman I., 1989, Continuum-mechanical derivation of the conservation equation for the pyrolysis and combustion of wood, Research Rep. 591, Technical Research Centre of Finland, Espoo.
- Wolcott M.P., Kamke F.A., Dillard D.A., 1990, *Fundamentals of flakeboard manufacture : viscoelastic behaviour of the wood component*, Wood and Fib.Sci., 22(4):345-361.
- Wozniak E., 1982, Evolution de la texture poreuse du bois de hêtre au cours de sa pyrolyse. Contribution aux phénomènes de transport et d'adsorption dans les matériaux ligneux, Thèse Université de Haute-Alsace.
- Zaror C.A., Pyle D.L., 1984, *Heat Transfer and kinetics in the low temperature pyrolysis of solids*, Chem.Eng.Sci. 39(1):147-158.

- Zaror C.A., Pyle D.L, 1986, *Competitive reactions model for the pyrolysis of lignocellulose: a critical study*, J. of Analytical and Applied Pyrolysis, **10**:1-12.
- Zobel B.J., Van Buijtenen J.P.,1989, Wood variation : its causes and control , Ed. Springer-Verlag, Berlin.



ANNEXE I

ANATOMIE

ANNEXE 1 : ANATOMIE DU BOIS

A1.1.Observation macroscopique

Il est possible de dégager des aspects communs aux arbres d'une même espèce. Lorsqu'on examine la section transversale d'un tronc d'arbre, on distingue (fig. A1.1) :

- * une première enveloppe protectrice : l'**écorce externe** ou **rhytidome**, constituée de cellules mortes;
- * une **écorce interne** ou **liber** qui conduit la sève;
- * l'**assise génératrice (cambium)** qui produit vers l'extérieur le liber et vers l'intérieur les cellules de bois;
- * le **bois** proprement dit ou **xylème**.

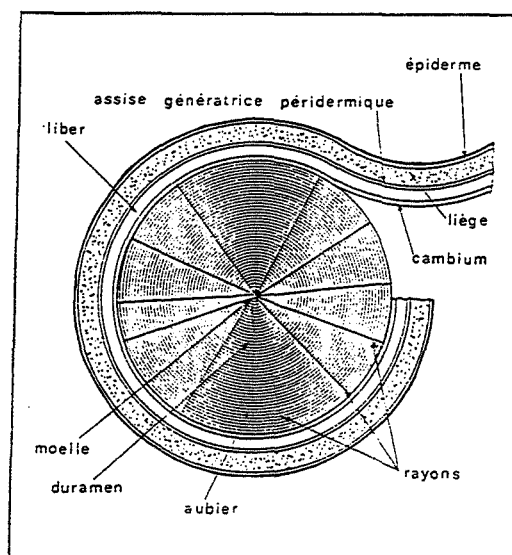


Figure A1.1. Coupe transversale du tronc d'un arbre

Le bois est constitué par des couches annuelles, appelées **cernes de croissance**. Les plus jeunes forment l'**aubier** : c'est le tissu conducteur d'eau et de sève des racines vers les feuilles. Les plus âgées constituent le **duramen** qui se forme à partir de l'aubier par la mort des cellules vivantes (duraminisation) et par l'imprégnation des parois cellulaires par diverses substances qui assurent la protection de l'arbre contre les parasites.

Le duramen ne participe plus à la vie de l'arbre, mais seulement à son soutien. Il présente en général des propriétés de résistance mécanique et de durabilité remarquables, tandis que l'aubier est plus sensible aux attaques biologiques et moins résistant mécaniquement.

Les essences où la distinction coeur-aubier est très nette sont dites à **bois parfait distinct**,

celles où la différence est imperceptible à **bois parfait non distinct**.

De plus, sous les climats à saisons contrastées, la génération cellulaire commence au printemps (**bois de printemps**) avec l'apparition de cellules de gros diamètre à parois minces et s'achève au début de l'automne (**bois d'été**) après la création de cellules de faible diamètre à parois épaisses.

Dans le cerne annuel, il y a donc une différence, plus ou moins marquée suivant les espèces, entre bois d'été et bois de printemps, source supplémentaire d'hétérogénéité de la structure.

A1.2. Le plan ligneux du bois.

Le bois est composé de millions de cellules, majoritairement orientées selon l'axe du tronc. Leur distribution dans le bois est spécifique d'une espèce et le plan qui préside à l'architecture d'un bois est appelé **plan ligneux**. Il représente le bois dans le plan radial (normal aux cernes), le plan tangentiel (tangent aux cernes) et le plan transversal (fig.A1.2). C'est l'ensemble des caractères de nature, de forme et d'arrangement des cellules, supposés constants pour une espèce donnée. Cette schématisation doit bien sûr être nuancée, compte-tenu de la géométrie du tronc d'arbre (conique et irrégulièrement circulaire).

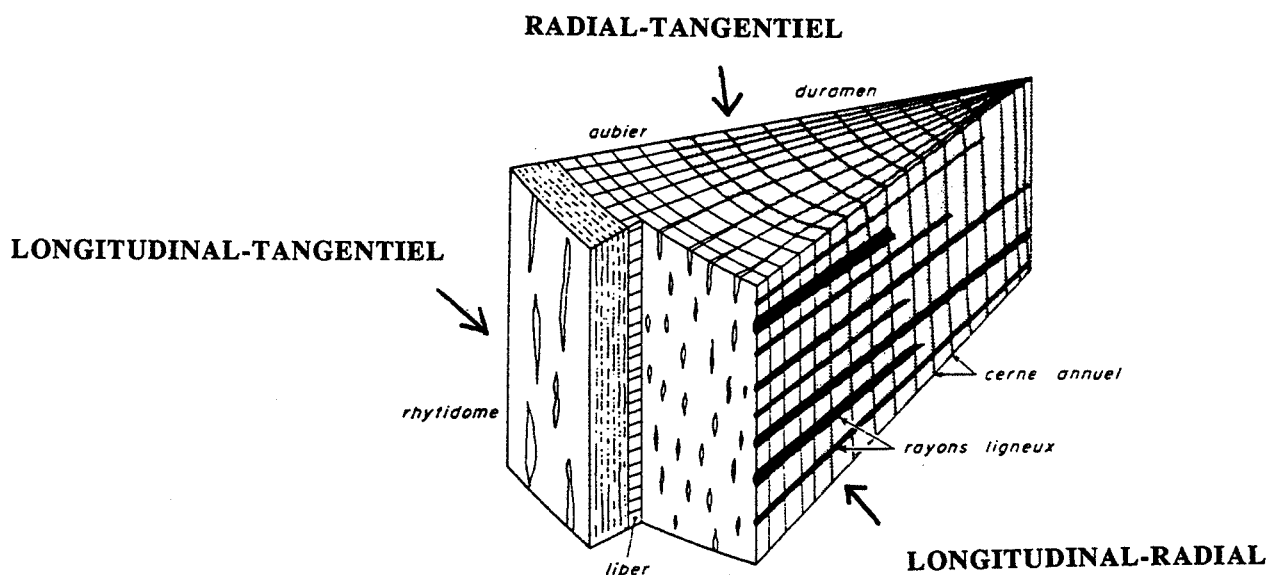
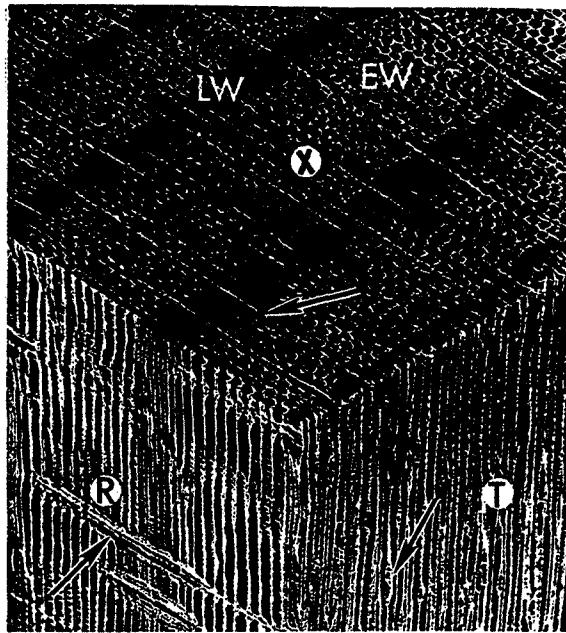


Figure A1.2. Illustration des plans ligneux du bois

A1.2.1 Le plan ligneux des résineux.



X DIRECTION DES FIBRES

R DIRECTION RADIALE

T DIRECTION TANGENTIELLE

LW BOIS FINAL

EW BOIS INITIAL

Figure A1.3. Photographie au microscope d'un résineux (d'après Thomas, 1980)

C'est le plus simple: il comprend un seul type de cellules longitudinales, les **trachéïdes**, assurant à la fois le rôle de soutien et de conduction et constituant jusqu'à 95% de la masse ligneuse. Ce sont des cellules allongées, de quelques mm de longueur, de section rectangulaire dont le diamètre de la lumière fait 20 à 30 μm . Les sections des trachéïdes de bois de printemps sont supérieures à celles du bois d'été (fig.A1.4).

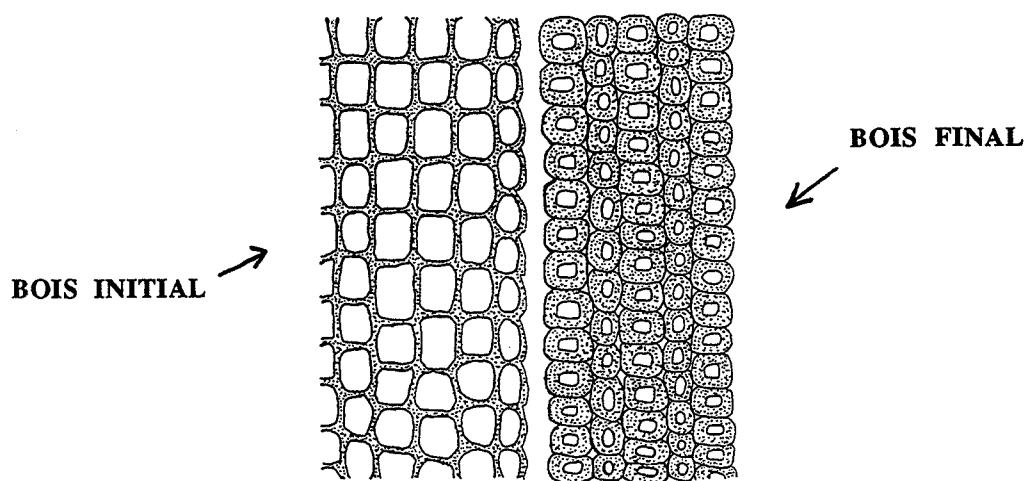


Figure A1.4. Schéma de la transition bois initial/bois final

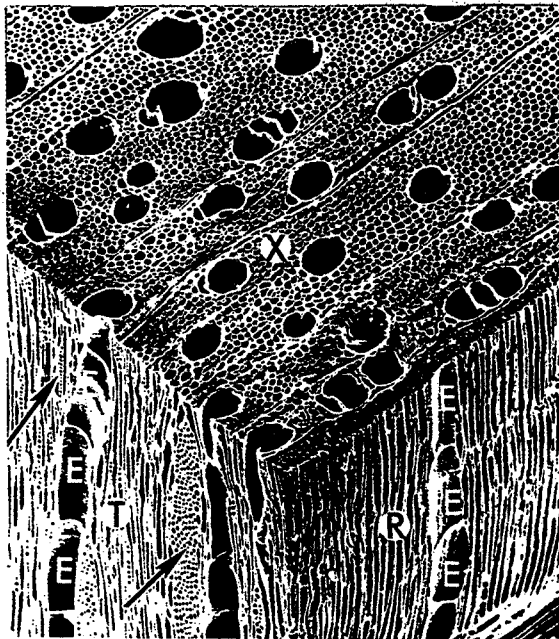
Les communications entre les tissus du bois sont assurées par des **punctuations** (liaison entre deux cellules) aérées, concentrées aux extrémités et sur les faces radiales des trachéïdes.

On observe comme autres éléments minoritaires:

* des **rayons ligneux** transversaux, cellules de parenchyme, c'est-à-dire de stockage et de distribution de la nourriture.

* des **canaux sécréteurs ou résinifères** longitudinaux ou inclus dans les rayons ligneux.

A1.2.2. Le plan ligneux des feuillus.



E VAISSEAU

Figure A1.5. Photographie au microscope des plans ligneux d'un feuillu
(d'après Thomas, 1980)

Il est nettement plus complexe. On distingue:

* Les fibres

Cellules de soutien, elles sont plus courtes que les trachéïdes (qq dixièmes de mm) et peu ponctuées.

* Les vaisseaux

Ce sont des files de cellules communiquant bout à bout. Leur longueur varie de quelques dm à quelques m . Ils assurent la circulation de la sève dans l'axe. Leur diamètre varie de 20 à 400 μm . Sur la section transversale, ils apparaissent comme des "pores". Si dans le bois initial, leur diamètre est supérieur à celui des vaisseaux du bois final, on dit que le bois est à zone initiale poreuse ou hétérogène. S'il n'y a pas de différence, le bois est à pores diffus ou homogène (fig.A1.6).

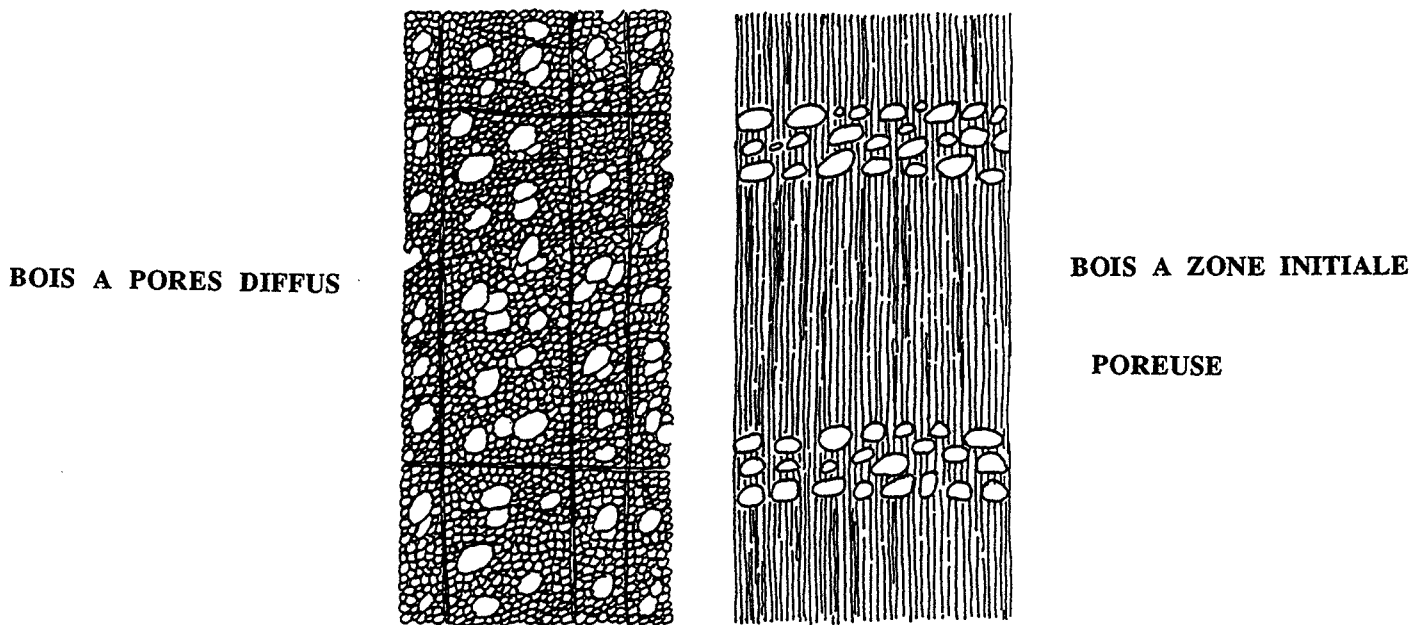


Figure A1.6. Schéma des différents arrangements de pores dans les feuillus

* Les rayons

Ce sont des cellules de parenchyme, analogues aux rayons des résineux.

Suivant les espèces, on peut rencontrer d'autres éléments: parenchymes axiaux, trachéïdes, éléments sécréteurs...La proportion des différents éléments définit la porosité du bois : plus un feuillu possède de vaisseaux, plus il est dit poreux.

A1.3.La cellule

Grâce à l'emploi du microscope électronique, il a été possible de visualiser très précisément l'architecture de la paroi cellulaire (fig.A1.7).La paroi est une structure stratifiée de l'extérieur vers l'intérieur de la cellule (Thomas, 1980). Elle se subdivise de la façon suivante :

1. une couche intercellulaire, **la lamelle mitoyenne (ML : middle lamella)** ou lamelle moyenne, commune à plusieurs cellules adjacentes.Elle est fine (0,5 à 1,5 μm), sauf aux angles de raccordements.

2. **la paroi primaire P.**

c'est une paroi très fine d'épaisseur 0,1 μm .

3. **la paroi secondaire S**

Elle constitue 90 % de l'épaisseur de la paroi et comprend trois zones :

* S₁ couche externe: épaisseur 0.1-0.35 μm

* S₂ couche centrale: épaisseur 1-10 μm

* S₃ couche interne ou membrane tertiaire 0.5-1 μm

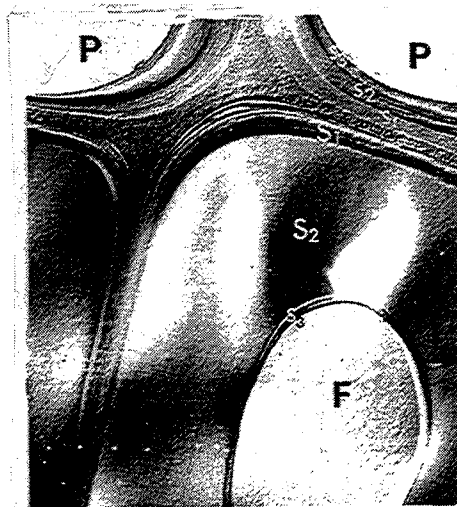


Figure A1.7. Visualisation de la paroi cellulaire au microscope électronique

Remarque : Cette description est valable pour les bois dits normaux. Dans les bois dits de "réaction" (dont les contraintes de croissance ont été anormales), l'organisation est différente.

A1.4.La microfibrille

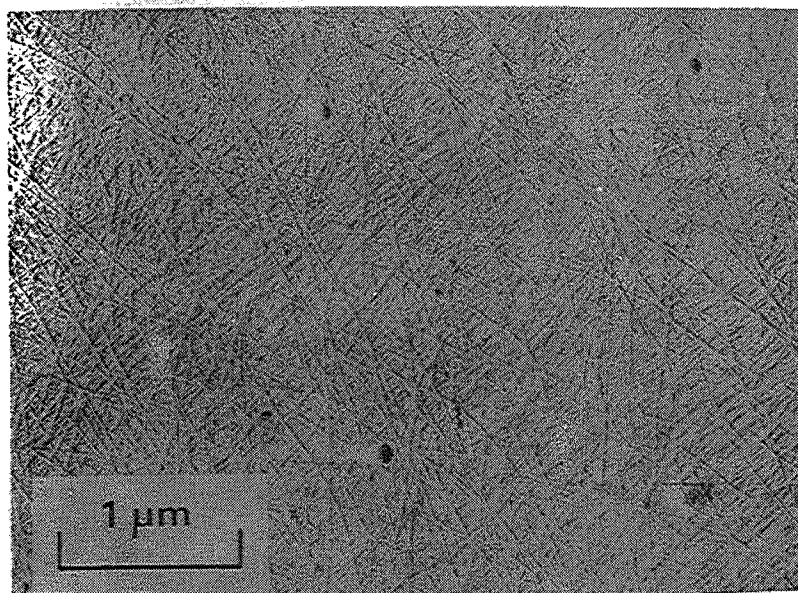


Figure A1.8. Microfibrilles vues au MEB (paroi primaire de pin)

En allant plus loin dans la caractérisation des parois, on s'aperçoit qu'elles sont tissées de macro et micro-fibrilles. On s'aperçoit également que ces fibrilles sont orientées par rapport à l'axe de la cellule et que cette orientation varie avec les couches (fig. A1.9).

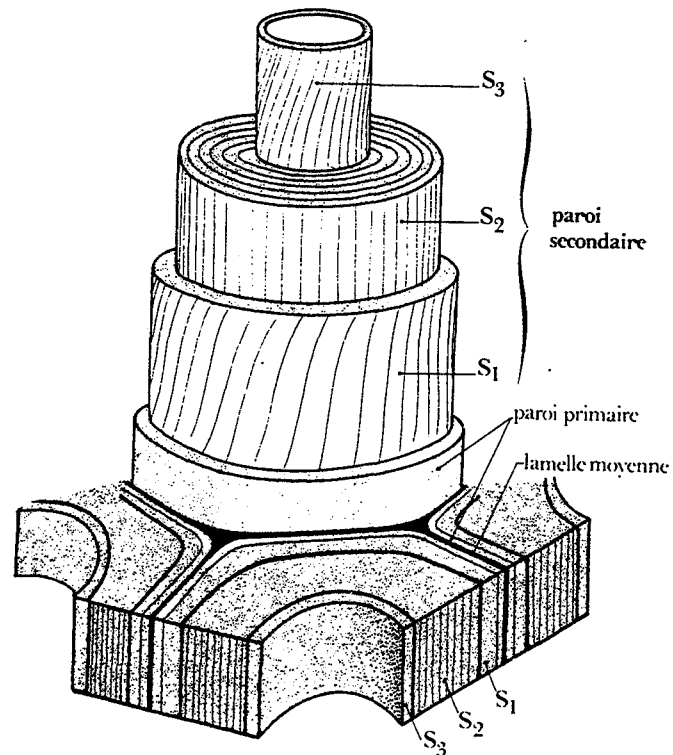
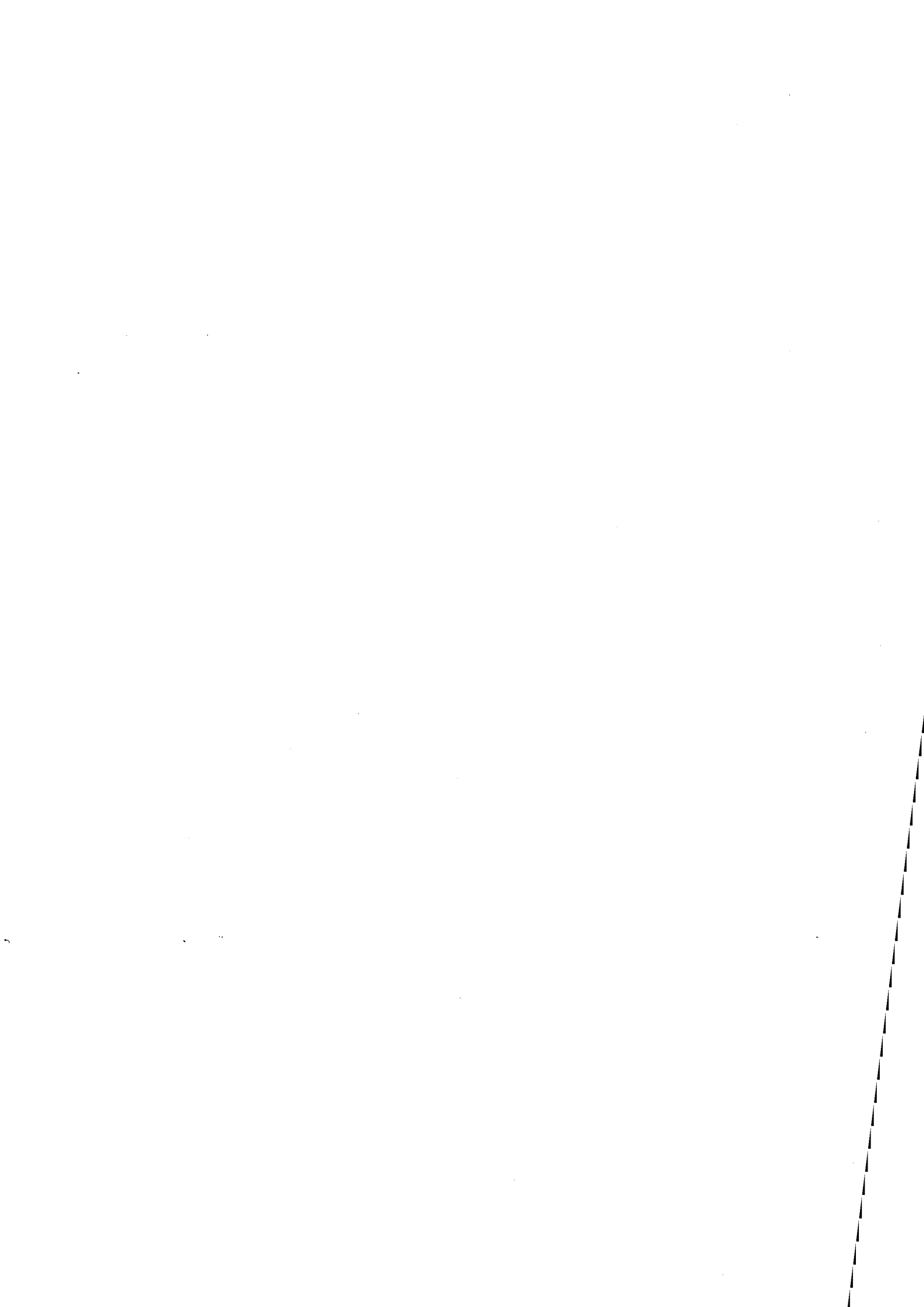


Figure A1.9. Vue télescopique de la paroi cellulaire

S₁ réseau de microfibrilles en hélice dont l'angle avec l'axe de la cellule va jusqu'à 80°

S₂ angle 5 à 30°

S₃ angle 60-90° moins régulièrement organisée que S₁ et S₂



ANNEXE II

DEFINITIONS

ANNEXE II : DEFINITIONS

A2.1. Taux d'humidité

Le taux d'humidité d'un échantillon de bois s'exprime par le pourcentage de la masse de l'échantillon par rapport à la masse anhydre.

La masse anhydre du bois est définie par convention comme la masse obtenue par séchage à l'étuve à 103°C jusqu'à obtention d'une masse constante :

$$X = \frac{M_H - M_0}{M_0}$$

exprimé en %

On peut remarquer qu'il n'existe aucun moyen de mesurer localement avec précision le taux d'humidité de manière non destructive. Il existe des méthodes de mesure par conductimétrie, mais elles ne sont valables que dans des domaines restreints d'humidité.

A2.2. Retrait et coefficients de rétractibilité

Au niveau macroscopique, on caractérise les variations dimensionnelles par :

* la rétractibilité B ou retrait volumique

$$B = \frac{V_S - V_0}{V_0} \quad \text{en } (\%)$$

* le coefficient de rétractibilité ou coefficient de retrait volumique

Il caractérise les variations de volume au voisinage d'une humidité H

$$\alpha_v = \frac{V_H - V_0}{V_0 X} \quad (\text{en } \% / \% \text{ de } X)$$

A2.3. Masse volumique

Il est bon de préciser plusieurs définitions de la densité pour le bois :

1/ masse volumique à l'humidité H :

$$\rho_H = \frac{M_H}{V_H}$$

2/ masse volumique anhydre

$$\rho_0 = \frac{M_0}{V_0}$$

On peut également utiliser la densité basale (ou infradensité)

$$\rho_b = \frac{M_0}{V_s}$$

Elle est assez souvent employée car la masse anhydre et le volume à saturation sont des conditions constantes et facilement reproductibles pour le bois.

On passe de la densité humide ρ_H à la densité anhydre ρ_0 par la relation

$$\rho_H = \frac{M_0(1 + H)}{V_0(1 + \alpha_V H)} = \rho_0 \frac{(1 + H)}{(1 + \alpha_V H)}$$

α_V étant le coefficient de retrait volumique déjà défini en A2.2

La densité réelle de la matière ligno-cellulosique constitutive des parois cellulaires est indépendante des espèces et vaut environ $\rho^* = 1.5 \text{ g/cm}^3$. On peut alors estimer la porosité , c'est-à-dire la fraction volumique des espaces intercellulaires pour un bois de densité anhydre ρ_0 par :

$$\pi = \frac{V}{V_0} = \frac{\rho - \rho^*}{\rho^*}$$

A2.4. Coefficient de dilatation thermique

Une augmentation de la température d'un solide s'accompagne d'une augmentation des oscillations moléculaires et la distance entre les molécules augmente. Il y a donc dilatation selon une direction donnée et augmentation de volume avec la température. On définit le coefficient de dilatation thermique α_{th} par :

$$\alpha_{th} = \frac{1}{l} \cdot \frac{dl}{d\theta} \quad (\text{en } \%/^{\circ} \text{C})$$

A2.5 Chaleur spécifique

La chaleur spécifique d'un matériau est définie comme le rapport entre sa capacité

calorifique et celle de l'eau à 15° C. S'il faut fournir une quantité de chaleur Q à m grammes du solide pour élever la température de $\Delta\theta$, C vaut :

$$C = \frac{Q}{m\Delta\theta} \quad (\text{en J/g}^\circ\text{C})$$

A2.6 Conductivité thermique

La conductivité thermique λ est définie par l'énergie thermique Q par unité de temps t qui passe à travers une épaisseur e d'un volume de matériau de surface A sous une différence de température stationnaire entre les faces $\Delta\theta$.

$$\lambda = \frac{Q.e}{A.t.\Delta\theta} \quad (\text{J/m s }^\circ\text{C})$$

A2.6 Diffusivité thermique

La connaissance du facteur de diffusivité est indispensable dans l'analyse des relations temps- température. Il est défini de la manière suivante :

$$a = \frac{\lambda}{C_p\rho} \quad (\text{m}^2/\text{s})$$

ANNEXE III

PROGRAMMES DE
MODELISATION

ANNEXE III: PROGRAMMES DE MODELISATION

METHODE PAR DIFFERENCES FINIES

```

{=====}

PROGRAM TRANSFERT;

{ modélisation de profils de températures au sein de la section d'une bûche
  cylindrique au cours d'une réaction de réтификаtion }
{ programme tranche par tranche }
{=====}

{Utilise co-processeur numérique : }
  {$N+}
{Utilise boîte des outils (méthodes numériques) : }

uses
dos, crt;
{=====}

const
  R:real=8.31441;           {J/K/mol}
  kelv:real=273.15;

type
  profil = array[0..1000] of extended;
var
  lambdab,k0,E,dif0,E0 : extended;           {paramètres de l'équation}
  dHp,dHh,Cph,Cpb,rohan0,roh0 : extended;
  hr,kt : extended;                          {pas en espace et en temps}
  Tc,Tin,Ts,rohtot0,X0 : extended;           {conditions initiales}
  T1,T2,roh1,roh2,X1,X2 : profil;            {profils de températures, de densité et
                                              d'humidité}
  J,I,N,M,erstat,io,pas,pa : integer;        {indices de temps et d'espace}
  fich1,fich2,fich3 : file of extended;
  ans,reponse : char;
  lst,list,fich,liste : text;
  ReponseChaine : string[12];
{=====}

procedure LireReponse1 (ligne:integer; var ReponseVar:extended);

var
  RepVarT : extended;

begin
  RepVarT := ReponseVar;
  repeat
    GotoXY (54,ligne); readln (ReponseChaine);
    GotoXY (54,ligne); writeln (' ':14);
    if (ReponseChaine = "") then
      begin
        RepVarT := ReponseVar;
        erstat := 0;
      end
  until

```

```

    end
    else
      val (ReponseChaine,RepVarT,erstat);
      until (erstat = 0);
      reponseVar := RepVarT;
      GotoXY (54,ligne); writeln(ReponseVar:11:2);
    end;
  {=====}

```

```

procedure LireReponse2 (ligne:integer; var ReponseVar:extended);

```

```

var
  RepVarT : extended;

begin
  RepVarT := ReponseVar;
  repeat
    GotoXY (54,ligne); readln (ReponseChaine);
    GotoXY (54,ligne); writeln (' ':14);
    if (ReponseChaine = "") then
      begin
        RepVarT := ReponseVar;
        erstat := 0;
      end
    else
      val (ReponseChaine,RepVarT,erstat);
      until (erstat = 0);
      reponseVar := RepVarT;
      GotoXY (54,ligne); writeln(ReponseVar:11);
    end;
  {=====}

```

```

Procédure LIREDON;

```

```

{lit et stocke les données}

```

```

var X,Y : extended;

```

```

begin
  assign (lst, 'C:\bois\mode\donnee3n.dat');
  reset (lst);
  readln(lst,Y);
  readln(lst,Tc);
  readln(lst,Tin);
  readln(lst,X);
  readln(lst,kt);
  readln(lst,hr);
  readln(lst,rohtot0);
  readln(lst,rohan0);
  readln(lst,roh);
  readln(lst,X0);
  readln(lst,lambdab);
  readln(lst,Cpb);
  readln(lst,Cph);
  readln(lst,dHh);
  readln(lst,dHp);
  readln(lst,E);

```

```

readln(lst,k0);
readln(lst,dif0);
readln(lst,E0);
close (lst);

clrscr;

GotoXY(5,3); write('temps du traitement Y (min)   [,   Y:11:2,'] = ');
GotoXY(5,4); write('température du four Tc (°C)   [,   Tc:11:2,'] = ');
GotoXY(5,5); write('température initiale Tin (°C)  [,   Tin:11:2,'] = ');
GotoXY(5,6); write('diamètre du bois X (mm)       [,   X:11:2,'] = ');
GotoXY(5,7); write('pas en temps kt (s)           [,   kt:11:2,'] = ');
GotoXY(5,8); write('pas en espace hr (mm)           [,   hr:11:2,'] = ');
GotoXY(5,9); write('densité totale rohtot0 (Kg/m**3) [,rohtot0:11:2,'] = ');
GotoXY(5,10);write('densité anhydre rohan0 (Kg/m**3)[,rohan0 :11:2,'] = ');
GotoXY(5,11);write('densité finale rohf (Kg/m**3)   [,   rohf:11:2,'] = ');
GotoXY(5,12);write('humidité initiale X0           [,   X0:11:2,'] = ');
GotoXY(5,13);write('conductivité lambda (W/m/K)   [, lambdab:11:2,'] = ');
GotoXY(5,14);write('capacité cal.bois Cpb (J/Kg/K)  [,   Cpb:11:2,'] = ');
GotoXY(5,15);write('capacité cal.eau Cph (J/Kg/K)   [,   Cph:11:2,'] = ');
GotoXY(5,16);write('enthalpie latente eau dHh (J/Kg)[,   dHh:11:2,'] = ');
GotoXY(5,17);write('enthalpie de pyrolyse dHp (J/Kg)[,   dHp:11:2,'] = ');
GotoXY(5,18);write('énergie d`activation E (J/mol)   [,   E:11,  ' ] = ');
GotoXY(5,19);write('constante de pyrolyse k0 (1/s)   [,   k0:11,  ' ] = ');
GotoXY(5,20);write('coeff.de diffusion dif0 (m**2/s)[,   dif0:11:2,'] = ');
GotoXY(5,21);write('énergie d`activation E0 (J/mol)   [,   E0:11,  ' ] = ');

GotoXY (5,23); write('Options prédéfinies      [ STOP , NON , OUI ] ? ');

repeat
  reponse := readkey;
  reponse := upcase (reponse);
until (reponse in ['O','N','S']);

case reponse of
  'S' : halt;
  'O' : begin
    GotoXY (58,23);
    writeln ('Oui');
  end;
  'N' : begin
    GotoXY (58,23); writeln ('Non');
    LireReponse1 (3, Y);
    LireReponse1 (4, Tc);
    LireReponse1 (5, Tin);
    LireReponse1 (6, X);
    LireReponse1 (7, kt);
    LireReponse1 (8, hr);
    LireReponse1 (9, rohtot0);
    LireReponse1 (10, rohan0);
    LireReponse1 (11, rohf);
    LireReponse1 (12, X0);
    LireReponse1 (13, lambdab);
    LireReponse1 (14, Cpb);
    LireReponse1 (15, Cph);
  end;
end;

```

```
        LireReponse1 (16, dHh);
        LireReponse1 (17, dHp);
        LireReponse2 (18, E);
        LireReponse2 (19, K0);
        LireReponse1 (20, dif0);
        LireReponse1 (21, E0);

    end;
end; {case}

assign (lst, 'C:\bois\mode\donnee3n.dat');
rewrite (lst);
writeln (lst,Y);
writeln (lst,Tc);
writeln (lst,Tin);
writeln (lst,X);
writeln (lst,kt);
writeln (lst,hr);
writeln (lst,rohtot0);
writeln (lst,rohan0);
writeln (lst,rohF);
writeln (lst,X0);
writeln (lst,lambda);
writeln (lst,Cpb);
writeln (lst,Cph);
writeln (lst,dHh);
writeln (lst,dHp);
writeln (lst,E);
writeln (lst,k0);
writeln (lst,dif0);
writeln (lst,E0);
close (lst);

N:=trunc(X/2/hr);
M:=trunc(Y*60/kt);

ans:=readkey;
clrscr;

GotoXY (5,10);
writeln ('Dernière valeur du temps (min) =',(M*kt/60.0):8:3);
GotoXY (5,12);
writeln('=====>>> Appuyer une touche pour continuer...');

gotoXY (5,14);
write ('temps (min) : 0.000');

gotoXY (5,14);
reponse := readkey;
reponse := upcase (reponse);
case reponse of
    'E' : halt;
end; {de case}

end;
```



```

=====
Procédure EQUATION;                                     {résolution par différences finies}

var f1,f2,f3,f4,f5,f6,f7,dif,difc,diffu,diffuc : extended;
    kont1,kont2,kont1c,kont2c : extended;
    capa,temp,dens,pyro,temps,capac,tempc : extended;
    densc,temphum,temphumc : extended;
    pyroc,pal,diff,humid,palc,difc,humidc : extended;
    tief,rad,zeit,kond,kondc , alpha,alphac : extended;

begin
  f1:=kt*1000000/sqr(hr);
  f5:=lambda*kt*1000000/sqr(hr);
  f2:=-f5*0.04/dHh/rohan0;
  f3:=-k0*kt;
  f4:=-E/R;
  f6:=kt/60.0;
  f7:=-E0/R;

  assign (fich, 'C:\bois\mode\resX3n.dat');
  rewrite (fich);
  assign (liste, 'C:\bois\mod\resROH3n.dat');
  rewrite (liste);
  assign (lst, 'C:\bois\mod\resTEMP3n.dat');
  rewrite (lst);
  assign (list, 'C:\bois\mode\NTs3n.dat');
  rewrite (list);

  For J:=0 to M-1 do
    begin
      temps := J*f6;
      writeln (lst,temps:5:2);
      gotoXY (19,14);
      write (temps:8:3);

      pas := m div 10;
      pa := n div 7;

      X1[N]:=0.0;                                     { humidité à la surface }
      X2[N]:=0.0;
      T1[N]:=Tc;                                     { température à la surface }
      T2[N]:=Tc;
      if (J=0) then
        begin
          X1[N]:=X0;                                 {pour X[0,N]=X0 ; T[0,N]=Tin}
          T1[N]:=Tin;
        end;

      For I:=N-1 downto 1 do
        begin
          { champ d'humidité }
          humid:=((I+1)*X1[I+1])-((2*I+1)*X1[I])+(I*X1[I-1]);
          dif:=dif0*exp(f7/(T1[i]+kelv));
          diffu:=f1*dif;
          diff:=diffu/I*humid;
        end;
      end;
    end;
end;

```

```

temp :=((I+1)*T1[I+1])-((2*I+1)*T1[I])+(I*T1[I-1]);
if ( temp < 0.0 ) then
  temp := 0.0;
pal:=f2/I*temp;
if ((T1[I] < 99.0)) then
  pal:=0.0;
  lambda:=0.2*X1[i] + lambdab;
if ((T1[I] >= 99.0)) then
  diff:=0.0;
  lambda:=0,024;
X2[i]:=diff+pal+X1[i];
if (X2[i] < 0.0) then
  X2[i]:=0.0;
if ( X1[I] = 0.0 ) then
  X2[0]:=0.0;
  lambda:=lambdab;

{ champ de densité }
if ( T1[I] < 180.0 ) then
  roh2[I]:=rohan0*(X2[I]-X1[I])+roh1[I];
if ( T1[I] >= 180.0 ) then
  roh2[I]:=f3*exp(f4/(T1[I]+kelv))*(roh1[I]-rohf)+roh1[I];
if (( T1[I] >= 180.0 ) and ( roh2[I] < rohf )) then
  roh2[i]:=rohf;

{ champ de température }
kont1:=f5/I/roh1[i];
capa :=(1+X1[i])/(X1[i]*Cph+Cpb);
dens :=roh2[i]-roh1[i];
kont2:=dHp/roh1[i];
pyro :=kont2*capa*dens;
kond :=kont1*capa*temp;
alpha:=lambda*capa/roh1[i];
if ( T1[I] < 180.0 ) then
  pyro:=0.0;
T2[I]:=kond+pyro+T1[I];
if ((T2[I] >= 99.0) and (X2[i] >0.0)) then
  T2[i]:=100.0;

{ détermination du temps d'intersection }
if ((Tc-0.1) < T2[0]) and (T2[0] < (Tc+0.1)) then
  begin
    i:= 0;
    Ts:= 0;
    Ts:= J*f6;
    writeln (list,'Ts(',i:2,') = ',Ts:5:2);
  end;

{ humidité au centre }
humidc:=X1[1]-X1[0];

```

```

difc:=dif0*exp(f7/(T1[0]+kelv));
diffuc:=f1*difc;
diffc:=diffuc*humidc;
tempc :=T1[1]-T1[0];
if ( tempc < 0.0 ) then
  tempc := 0.0;
palc:=f2*tempc;
if ((T1[0] < 99.0)) then
  palc:=0.0;
if ((T1[0] >= 99.0)) then
  diffc:=0.0;
X2[0]:=diffc+palc+X1[0];
if (X2[0] < 0.0) then
  X2[0]:=0.0;
if ( X1[1] = 0.0 ) then
  X2[0]:=0.0;

{ densité au centre }
if ( T1[0] < 180.0 ) then
  roh2[0]:=rohan0*(X2[0]-X1[0])+roh1[0];
if ( T1[0] >= 180.0 ) then
  roh2[0]:=f3*exp(f4/(T1[0]+kelv))*(roh1[0]-rohf)+roh1[0];
if (( T1[0] >= 180.0 ) and ( roh2[0] < rohf )) then
  roh2[0]:=rohf;

{ température au centre }
kont1c:=f5/roh1[0];
capac :=(1+X1[0])/(X1[0]*Cph+Cpb);
densc :=roh2[0]-roh1[0];
kont2c:=dHp/roh1[0];
pyroc :=kont2c*capac*densc;
kondc :=kont1c*capac*tempc;
alphac:=lambda*capac/roh1[0];
if (T1[0] < 180.0) then
  pyroc:=0.0;
T2[0]:=kondc+pyroc+T1[0];
if ((T2[0] >= 99.0) and (X2[0] >0.0)) then
  T2[0]:=100.0;

```

```

{ détermination du temps d'intersection }
if ((Tc-0.1) < T2[0]) and (T2[0] < (Tc+0.1)) then
  begin
    i:= 0;
    Ts:= 0;
    Ts:= J*f6;
    writeln (list,'Ts(',i:2,') = ',Ts:5:2);
  end;

```

```

{ densité à la surface }
if ( T1[N] < 180.0 ) then

```

```

    roh2[N]:=rohan0*(X2[N]-X1[N])+roh1[N];
    if ( T1[N] >= 180.0 ) then
        roh2[N]:=f3*exp(f4/(T1[N]+kelv))*(roh1[N]-rohf)+roh1[N];
    if (( T1[N] >= 180.0 ) and ( roh2[N] < rohf ) ) then
        roh2[0]:=rohf;

```

{====> résultats : température, humidité pour le temps (vieux) en chiffre }

```

For I:= N downto 0 do
    begin
        if ( (j=0) or (trunc(j/pas)=j/pas) or (j=m-1) ) then
            begin
                if((i=1) or (trunc(i/pa)=i/pa)) then
                    rad:=0;
                    rad:=i*hr;
                    zeit:=0;
                    zeit:=j*f6;
                    writeln (fich,'X(',zeit:5:2;',',rad:4:1,') = ',X1[i]:6:2);
                end;
            end;

For I:= N downto 0 do
    begin
        if ( (j=0) or (trunc(j/pas)=j/pas) or (j=m-1) ) then
            begin
                if((i=1) or (trunc(i/pa)=i/pa)) then
                    rad:=0;
                    rad:=i*hr;
                    zeit:=0;
                    zeit:=j*f6;
                    writeln (liste,'roh(',zeit:5:2;',',rad:4:1,') = ',roh1[i]:6:2);
                end;
            end;

For I:= N downto 0 do
    begin
        rad:=0;
        rad:=i*hr;
        if (abs(T1[I]) > (Tin+0.1)) then
            writeln (lst,'T(',rad:4:1,')= ',T1[I]:6:2);
        end;

For I:= N downto 0 do
    begin
        write (fich2,X1[I]);
        GOTOXY(60,17); writeln(X1[I]:4:2);
    end;

For I:= N downto 0 do
    begin
        write (fich3,roh1[I]);
        GOTOXY(60,20); writeln(roh1[I]:7:3);
    end;

```

```

For I:= N downto 0 do
begin
  write (fich1,T1[I]);
  GOTOXY(60,23); writeln(T1[I]:7:3);
  { ans:=readkey;}
end;

{ transfère les taux d'humidité du temps j (nouveau) dans j-1 (vieux) : }
For I:=N downto 0 do
  X1[I] := X2[I];

{ transfère la densité du temps j (nouveau) dans j-1 (vieux) : }
For I:=N downto 0 do
  roh1[I] := roh2[I];

{ transfère les températures du temps j (nouveau) dans j-1 (vieux) : }
For I:=N downto 0 do
  T1[I] := T2[I];

end;

close (fich);
close (liste);
close (lst);
close (list);

{ pour enregistrer le taux d'humidité pour j = M }
For I:= N downto 0 do
  write (fich2,X1[I]);

{ pour enregistrer la densité pour j = M }
For I:= N downto 0 do
  write (fich3,roh1[I]);

{ pour enregistrer les températures pour j = M }
For I:= N downto 0 do
  write (fich1,T1[I]);

end;
{ ===== }

begin
LIREDON;

For I:=0 to N do T1[I]:=Tin;           { conditions initiales }
For I:=0 to N do roh1[I]:=rohtot0;
For I:=0 to N do X1[I]:=X0;
For I:=0 to N do T2[I]:=Tin;
For I:=0 to N do roh2[I]:=rohtot0;
For I:=0 to N do X2[I]:=X0;

```

```
assign(fich1,'C:\bois\mode\temp3.dat');  
rewrite (fich1);  
assign(fich2,'C:\bois\mode\humid3.dat');  
rewrite (fich2);  
assign(fich3,'C:\bois\mode\densit3.dat');  
rewrite (fich3);
```

```
EQUATION;
```

```
GotoXY(5,24); write('filesize = ',filesize(fich1):6);  
reponse := readkey;  
reponse := upcase (reponse);
```

```
close (fich1);  
close (fich2);  
close (fich3);  
end.
```

```
{=====}
```

CRANK - NICHOLSON

Seules les procédures sont données, le corps principal du programme étant le même.

```
PROCEDURE EQUATION;
```

```
var zeit_rad, temps:extended;
    f6:extended;
```

```
BEGIN
```

```
  {initialiser les profil}
```

```
  f1:=kt*1000000/sqr(hr)/2;
  f4:=-E/R;
  f6:=kt/60.0;
  f7:=-E0/R;
```

```
  { stockage des resultats dans des fichiers ASCII }
```

```
  assign (fich,'C:\bois\mode\resX3n.dat');
  rewrite (fich);
  assign (liste,'C:\bois\mode\resROH3n.dat');
  rewrite (liste);
  assign (lst,'C:\bois\mode\resTEMP3n.dat');
  rewrite (lst);
  assign (list,'C:\bois\mode\NTs3n.dat');
  rewrite (list);
```

```
for j:=0 to M-1 do
```

```
  BEGIN
```

```
    temps:=j*f6;          {display of time}
    writeln(lst,temps:5:2);
    gotoXY(19,14);
    write(temps:8:3);
```

```
    ZONE(i1,i2,i3);
```

```
    for i:=0 to N do dif[i]:=dif0*exp(f7/(T1[i]+kelv));
```

```
    for i:=0 to i1 do lambda[i]:=0.2*X1[i]+lambda2;
```

```
    if i2>i1 then
```

```
      BEGIN
```

```
        for i:=i1+1 to i2 do
```

```
          if i<>N then begin
```

```
            lambda[i]:=lambda3;
```

```
          end;
```

```
      END;
```

```
    if i2<N then
```

```
      BEGIN
```

```
        for i:=i2+1 to N do lambda[i]:=lambda2 ;
```

```
      END;
```

```

COEF_HUM;
GAUFRE(C,D,X2);
  for i:=0 to N do if X2[i]<0 then X2[i]:=0; (remplacer les hum. négatifs par 0)
COEF_DENS(roh2);
COEF_TEMP;
GAUFRE(A,B,T2);

```

```

for i:=0 to N do
  BEGIN
    if (T1[i]>T2[i]) and (T1[i]<Tc) then T2[i]:=T1[i];
  END;

```

{====> écriture des résultats dans les fichiers ASCII
humidité, de la densité et de la température pour le temps (vieux)}

```

pas:=m div 10;
pa:=n div 7;

```

```

For I:= N downto 0 do
  begin
    if ( (j=0) or (trunc(j/pas)=j/pas) or (j=m-1) ) then
      begin
        if((i=1) or (trunc(i/pa)=i/pa)) then
          rad:=0;
          rad:=i*hr;
          zeit:=0;
          zeit:=j*f6;
          writeln (fich,'X(',zeit:5:2,',',rad:4:1,') = ',X1[i]:6:2);
        end;
      end;

```

```

For I:= N downto 0 do
  begin
    if ( (j=0) or (trunc(j/pas)=j/pas) or (j=m-1) ) then
      begin
        if((i=1) or (trunc(i/pa)=i/pa)) then
          rad:=0;
          rad:=i*hr;
          zeit:=0;
          zeit:=j*f6;
          writeln (liste,'roh(',zeit:5:2,',',rad:4:1,') = ',roh1[i]:6:2);
        end;
      end;

```

```

For I:= N downto 0 do
  begin
    rad:=0.0;
    rad:=i*hr;
    if (abs(T1[I]) > (Tin+0.1)) then
      writeln (lst,'T(',rad:4:1,') = ',T1[I]:6:2);
    end;

```



```
{====> écriture des résultats dans les fichiers binaires
  humidité, de la densité et de la température pour le temps (vieux) }
```

```
For I:= N downto 0 do
begin
  write (fich2,X1[I]);
  GOTOXY(60,17); writeln('hum =',X1[I]:4:2);
end;
```

```
For I:= N downto 0 do
begin
  write (fich3,roh1[I]);
  GOTOXY(60,20); writeln('roh =',roh1[I]:7:3);
end;
```

```
For I:= N downto 0 do
begin
  write (fich1,T1[I]);
  GOTOXY(60,23); writeln('temp=',T1[I]:7:3);
end;
```

```
for i:=0 to N do
  BEGIN
    X1[i]:=X2[i];
    roh1[i]:=roh2[i];
    T1[i]:=T2[i];
  END;
```

```
END;
```

```
close (fich);
close (liste);
close (lst);
close (list);
```

```
{ pour enregistrer le taux d'humidité pour j = M }
For I:= N downto 0 do
  write (fich2,X1[I]);
```

```
{ pour enregistrer la densité pour j = M }
For I:= N downto 0 do
  write (fich3,roh1[I]);
```

```
{ pour enregistrer les températures pour j = M }
For I:= N downto 0 do
  write (fich1,T1[I]);
```

```
end;
```

```
{=====  
=====}
```

```

PROCEDURE ZONE(var i1,i2,i3:integer);
  BEGIN
    if j=0 then    begin
                    i1:=N;
                    i2:=N;
                    i3:=N;
                    for i:=0 to N do
                      begin
                        T1[i]:=Tin;
                        X1[i]:=X0;
                        roh1[i]:=rohtot0;
                      end;
                    end;
    if j>0 then    begin
                    T1[N]:=Tc;
                    i:=N-1;
                    while (T1[i]>180) and (i>0) do i:=i-1;
                    i3:=i;

                    i:=i3;
                    while (X1[i]=0 ) and (i<>0) do i:=i-1;
                    i2:=i;

                    i:=i2;
                    while (T1[i]>=100) and (i<>0) do i:=i-1;
                    i1:=i;
                    end;
  END;

```

```

PROCEDURE GAUFRE(var P,K:profil;var G:profil);

```

```

  BEGIN
    for i:=N-1 downto 1 do
      BEGIN
        if P[i]<>0 then
          BEGIN
            P[3*i+1]:=P[3*i+1]-P[3*i+2]*P[3*i+3]/P[3*i+4];
            K[i]:=K[i]-K[i+1]*P[3*i+2]/P[3*i+4];
            P[3*i+2]:=0;
          END;
        END;
        P[1]:=P[1]-P[2]*P[3]/P[4];
        K[0]:=K[0]-K[1]*P[2]/P[4];
        P[2]:=0;
        G[0]:=K[0]/P[1];
        for i:=1 to N do
          BEGIN
            K[i]:=K[i]-P[3*i]*G[i-1];
            G[i]:=K[i]/P[3*i+1];
          END;
        END;
  END;

```



```

if 0<i1 then
  BEGIN
    for i:=1 to i1 do
      BEGIN
        if i<>N then
          BEGIN

            T1[N+1]:=Tc;
            A[3*i]:=-l[i];
            A[3*i+1]:=rm[i]*Chm[i]+l[i]*(2+1/i);
            A[3*i+2]:=-(1+1/i)*l[i];
            B[i]:=l[i]*T1[i-1]+(rm[i]*Chm[i]-l[i]*(2+1/i))
                *T1[i]+(1+1/i)*l[i]*T1[i+1];

          END;
        END;
      END;
    END;
  END;

```

{ au centre de la buche }

```

if i1>0 then
  BEGIN
    A[1]:=2*l[0]+rm[0]*Chm[0];
    A[2]:=-2*l[0];
    B[0]:=(rm[0]*Chm[0]-2*l[0])*T1[0]+2*T1[1]*l[0];
  END;

```

```

if (i1=0) and (i2>0) then
  BEGIN
    A[1]:=1;
    A[2]:=0;
    B[0]:=T1[0];
  END;

```

```

if (i2=0) and (i3>0) then
  BEGIN
    A[1]:=2*l[0]+rm[0]*Chm[0];
    A[2]:=-2*l[0];
    B[0]:=(rm[0]*Chm[0]-2*l[0])*T1[0]+2*T1[1]*l[0];
  END;

```

```

if i3=0 then
  BEGIN
    A[1]:=(2*l[0]+rm[0]*Chm[0]);
    A[2]:=-2*l[0];
    B[0]:=(rm[0]*Chm[0]-2*l[0])*T1[0]+2*l[0]*T1[1]-
        (roh2[0]-roh1[0])*dHp;
  END;

```

```

{ en surface }
  A[3*N]:=0;
  A[3*N+1]:=1;
  B[N]:=Tc;

```

END;

```
PROCEDURE COEF_HUM;
```

```
var  
  diffu:extended;
```

```
BEGIN
```

```
  for i:=0 to N do dif[i]:=dif0*exp(f7/(T1[i]+kelv));
```

```
{pour l'humidite }
```

```
  if i3<N-1 then
```

```
    BEGIN
```

```
      for i:=i3+1 to N-1 do
```

```
        BEGIN
```

```
          C[3*i]:=0;
```

```
          C[3*i+1]:=1;
```

```
          C[3*i+2]:=0;
```

```
          D[i]:=0;
```

```
        END;
```

```
    END;
```

```
  if i2<i3 then
```

```
    BEGIN
```

```
      for i:=i2+1 to i3 do
```

```
        BEGIN
```

```
          C[3*i]:=0;
```

```
          C[3*i+1]:=1;
```

```
          C[3*i+2]:=0;
```

```
          D[i]:=0;
```

```
        END;
```

```
    END;
```

```
  if i1<i2 then
```

```
    BEGIN
```

```
      for i:=i1+1 to i2 do
```

```
        BEGIN
```

```
          if i<>N then
```

```
            begin
```

```
              C[3*i]:=0;
```

```
              C[3*i+1]:=1;
```

```
              C[3*i+2]:=0;
```

```
              D[i]:=X1[i]-2*lambda[i]*f1/dHh/rohan0*
```

```
              (T1[i+1]-2*T1[i]+T1[i-1]+(T1[i+1]-T1[i])/i);
```

```
            end;
```

```
          END;
```

```
    END;
```

```

if 0<i1 then
  BEGIN
    for i:=1 to i1 do
      BEGIN
        if i<>N then

          BEGIN
            X1[N+1]:=0;
            C[3*i]:=-dif[i]*f1;
            C[3*i+1]:=1+dif[i]*f1*(2+1/i);
            C[3*i+2]:=-(1+1/i)*dif[i]*f1;
            D[i]:=dif[i]*f1*X1[i-1]+(1-(2+1/i)*dif[i]*f1)*X1[i]+(1+1/i)*dif[i]*f1*X1[i+1];
          END;

        END;
      END;
    END;
  END;

```

{ au centre de la buche: }

```

if i1>0 then
  BEGIN
    C[1]:=1+dif[0]*2*f1;
    C[2]:=-dif[0]*2*f1;
    D[0]:=2*f1*dif[0]*X1[1]+(1-2*f1*dif[0])*X1[0];
  END;

```

```

if (i1=0) and (i2>0) then
  BEGIN
    C[1]:=1;
    C[2]:=0;
    D[0]:=X1[0]-4*lambda[0]*f1/rohan0/dHh*(T1[1]-T1[0]);
  END;

```

```

if (i2=0) and (i3>0) then
  BEGIN
    C[1]:=1;
    C[2]:=0;
    D[0]:=0;
  END;

```

```

if i3=0 then
  BEGIN
    C[1]:=1;
    C[2]:=0;
    D[0]:=0;
  END;

```

{ en surface }

```

    C[3*N]:=0;
    C[3*N+1]:=1;
    D[N]:=0;
  END;

```

```

PROCEDURE COEF_DENS(var roh2:profil);

BEGIN
  if i3<N-1 then
    BEGIN
      for i:=i3+1 to N do
        roh2[i]:=roh1[i]-k0*kt*exp(-E/R/(T1[i]+kelv))*(roh1[i]-rohf);
      END;

  if i2<i3 then
    BEGIN
      for i:=i2+1 to i3 do
        roh2[i]:=roh1[i];
      END;

  if i1<i2 then
    BEGIN
      for i:=i1+1 to i2 do
        roh2[i]:=roh1[i]+rohan0*(X2[i]-X1[i]);
      END;

  if 0<i1 then
    BEGIN
      for i:=1 to i1 do
        roh2[i]:=roh1[i]+rohan0*(X2[i]-X1[i]);
      END;

  { au centre de la buche }

  if i1>0 then
    roh2[0]:=roh1[0]+rohan0*(X2[0]-X1[0]);

  if (i1=0) and (i2>0) then
    roh2[0]:=roh1[0]+rohan0*(X2[0]-X1[0]);

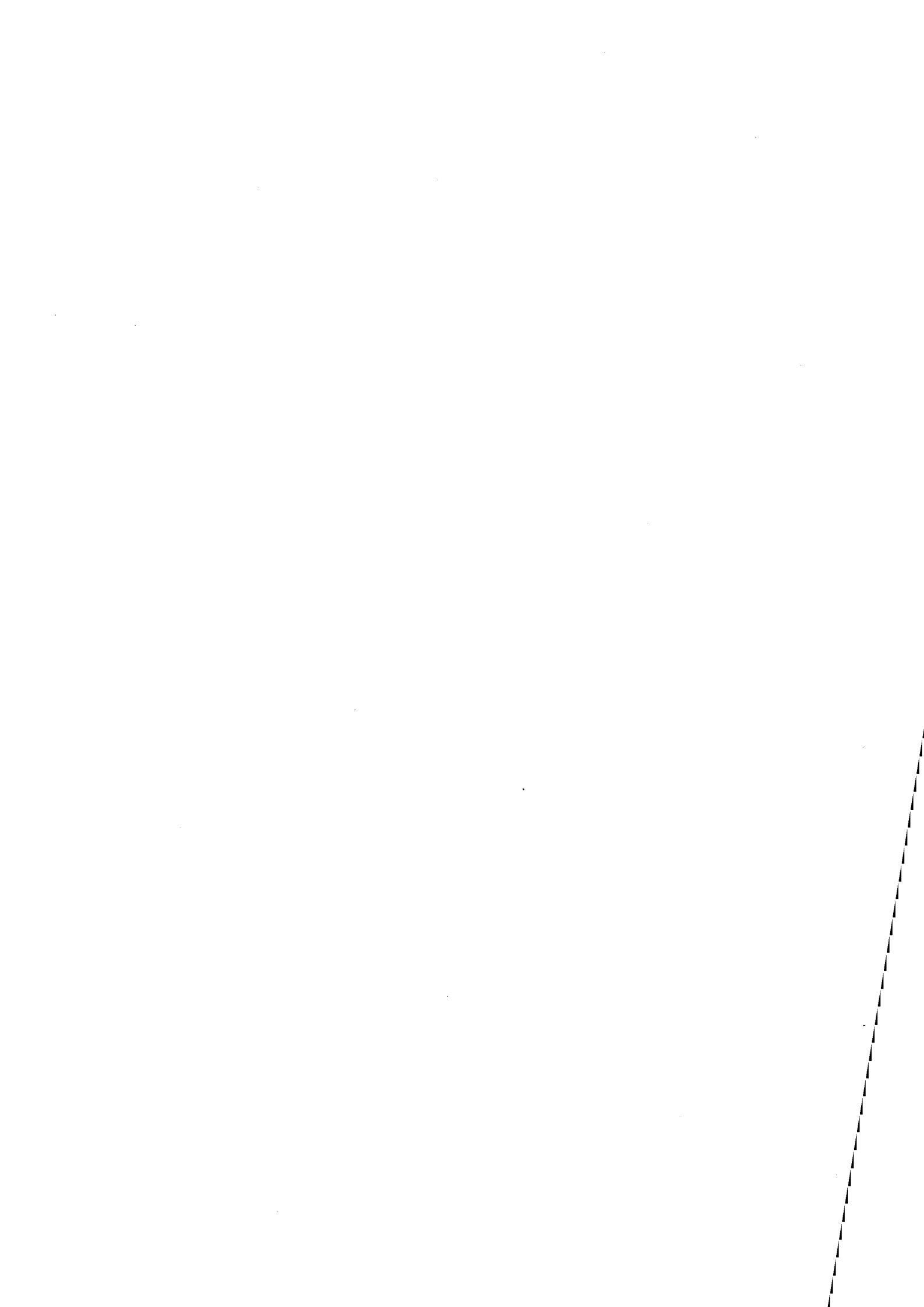
  if (i2=0) and (i3>0) then
    roh2[0]:=roh1[0];

  if i3=0 then
    roh2[0]:=roh1[0]-k0*kt*exp(-E/R/(T1[0]+kelv))
      *(roh1[0]-rohf);

  { en surface }
  if j=0 then roh2[N]:=roh1[N]+rohan0*(X2[N]-X1[N]);
  if j<>0 then roh2[N]:=roh1[N]-k0*kt*exp(-E/R/(T1[N]+kelv))
    *(roh1[N]-rohf);

END;

```



ANNEXE IV

COMPARAISON DE
MOYENNES

ANNEXE IV: COMPARAISON DE MOYENNES

Soient deux échantillons statistiques suivant une loi normale et définis de la façon suivante :

	MOYENNE	ECART-TYPE	Nombre d'échant.
ECHANTILLON 1	m_1	σ_1	n_1
ECHANTILLON 2	m_2	σ_2	n_2

on calcule alors :

$$\sigma^2 = \frac{n_1\sigma_1^2 + n_2\sigma_2^2}{n_1 + n_2 - 2}$$

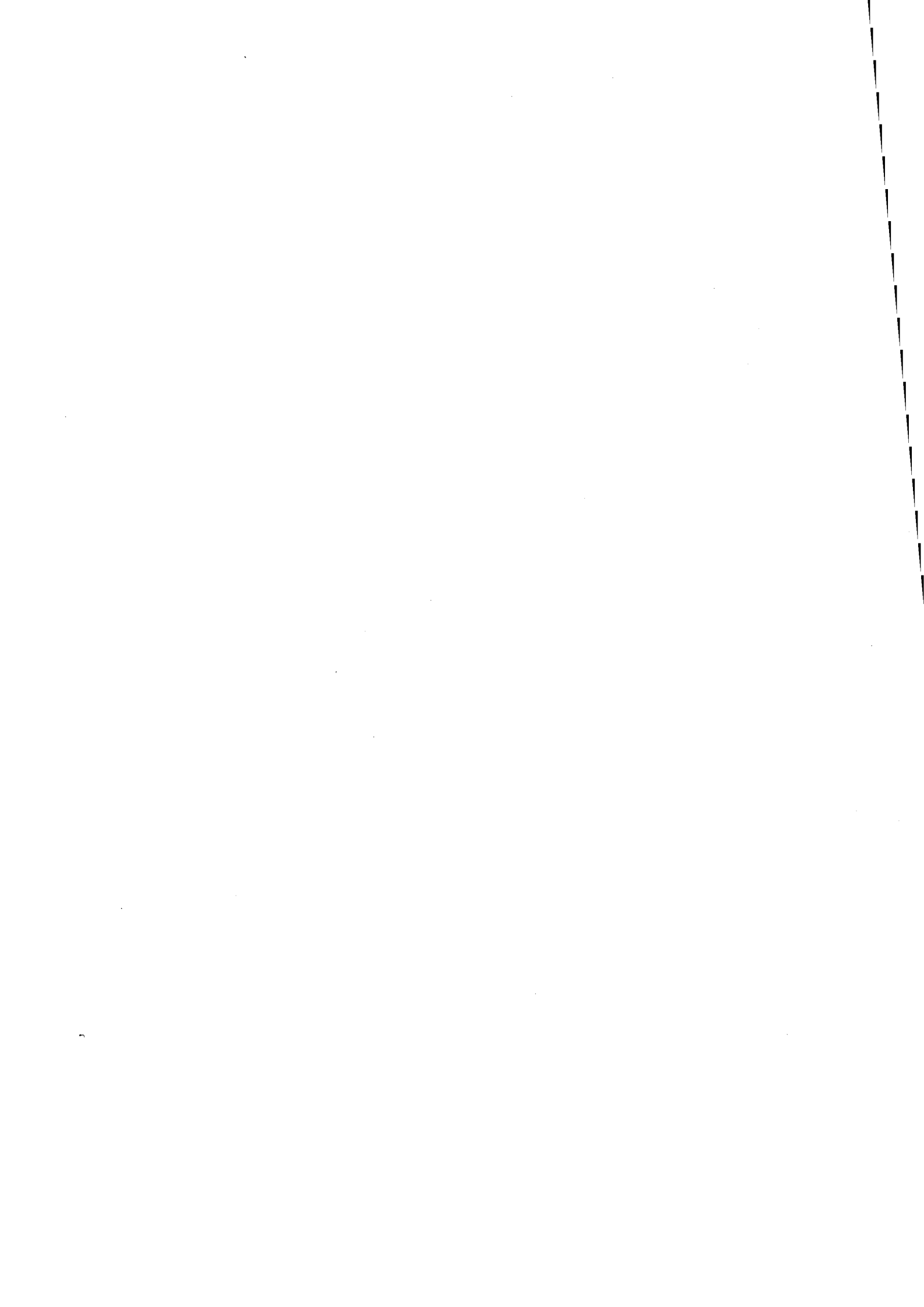
et

$$t = \frac{|m_1 - m_2|}{\sigma \sqrt{\frac{1}{n_1} + \frac{1}{n_2}}}$$

On consulte ensuite la table de Student-Fisher à la ligne correspondant au nombre de degré de liberté $n_1 + n_2 - 2$. Au seuil $1 - p = n\%$, on trouve la valeur t_0

Si t calculé $> t_0$, il y a moins de $n\%$ de chance que l'on ait pu obtenir cette valeur de t tout en ayant deux populations qui ont la même moyenne, on peut donc refuser l'hypothèse d'égalité des moyennes.

Si t calculé $< t_0$, on peut admettre que les moyennes des deux populations normales sont statistiquement identiques.



ANNEXE V

MESURES
ULTRASONORES

HETRE OL 1 MHz	direction L								
	Vd	Ve	Amt	f _{mt}	A1m	f1m	A2m	f2m	α
NATUREL	4852	4660	19	508	22	570	32	458	5
230 ° C	4806	4897	30	586	31	622	46	382	8
240 ° C	4341	4415	29	600	30	650	42	508	6
250 ° C	5323		26	426	28	618	38	472	5
270 ° C	5172	5302	27	532	30	612	38	544	4
	direction R								
NATUREL	2281	2167	22	584	22	584	51	564	15
230 ° C	2602	2937	26	548	26	566	43	432	9
240 ° C	2714	2154	28	616	32	590	56	528	12
250 ° C	2431	2287	31	608	32	632	58	584	13
270 ° C	2368	2201	30	542	31	604	53	604	11
	direction T								
NATUREL	1590	1629	32	494	33	522	65	522	16
230 ° C	1772	1747	30	454	35	520	59	386	12
240 ° C	1880	1790	34	564	40	492	64	648	12
250 ° C	1618	1797	44	378	47	352	64	450	9
270 ° C	1533	1618	39	416	49	482	63	626	7

HETRE	PLAN LR A 20										
	OT 1 MHz	VOL conv	VOT	Amsa	fmsa	Amsd	fmsd	fc	α	α	α
NATUREL	5952	1522	29	618	69	620	1320	8	10	9	0,35
230 ° C	4908	1387	41	568	83	572	1330	14	14	14	0,54
240 ° C	3707	1971	36	546	84	585	1216	11	14	13	0,75
250 ° C	5355	1741	37	608	85	617	1046	12	14	13	0,59
270 ° C	5457	1714	43	516	78	500	1488	15	12	14	0,74
	PLAN LT A20										
NATUREL	6135	1238	27	560	66	560	1320	7	9	8	0,28
230 ° C	4908	1473	38	564	76	560	1370	12	12	12	0,50
240 ° C	4469	1524	43	542	91	532	1250	15	16	16	0,72
250 ° C	5525	1359	53	456	100	464	1109	20	18	19	0,90
270 ° C	5242	1332	43	522	81	540	1780	15	13	14	0,57
	PLAN RL A 20										
NATUREL	2438	1561	26	646	65	641	1416	6	9	8	0,31
230 ° C	2426	1794	30	716	72	703	1420	8	11	10	0,40
240 ° C	3115	1938	33	630	79	634	1216	10	13	12	0,59
250 ° C	2285	1630	40	408	88	440	1377	13	15	14	0,89
270 ° C	2177	1569	30	636	70	621	1460	8	10	9	0,35
	PLAN RT A10										
NATUREL	2496	884	35	572	74	620	1333	16	16	16	0,39
230 ° C	2573	1063	34	592	82	589	1050	15	18	17	0,49
240 ° C	2761	1108	33	508	81	488	1268	15	18	17	0,59
250 ° C	2505	942	46	508	93	515	1350	21	21	21	0,62
270 ° C	2147	863	40	472	83	500	1040	18	19	19	0,55
	PLAN TL A20										
NATUREL	1607	1311	29	564	71	599	1259	8	11	10	0,37
230 ° C	1738	1491	35	598	84	571	1253	11	14	13	0,52
240 ° C	1735	1554	35	576	83	572	1255	11	14	13	0,56
250 ° C	1695	1278	34	564	83	524	1140	10	14	12	0,43
270 ° C	1452	1253	29	652	74	649	1180	8	11	10	0,31
	PLAN TR A10										
NATUREL	1510	882	36	460	76	520	1227	16	17	17	0,52
230 ° C	1817	1076	42	576	87	560	1006	19	20	20	0,59
240 ° C	1846	1062	45	564	93	555	1270	21	21	21	0,63
250 ° C	1432	962	51	532	96	537	1011	24	22	23	0,66
270 ° C	1227	864	37	424	79	422	1120	17	17	17	0,55

HETRE 5 MHz	DIRECTION LONGITUDINALE				PEUPLIER 5 MHz	DIRECTION LONGITUDINALE				DOUGLAS 5 MHz	DIRECTION LONGITUDINALE			
	Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)- A40	fms (kHz)		Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)- A40	fms (kHz)		Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)- A40	fms (kHz)
NATUREL	4325 (0,4)	27 (1,5)	24 (2)	605 (1)	NATUREL	4914 (0,1)	30 (4)	24 (0,5)	658 (2)	NATUREL	3948 (1)	28 (8)	41 (9)	458 (34)
230 ° C	4212 (0,9)	36 (2,1)	32 (6)	574 (15,4)	230 ° C	5085 (2)	36 (2)	30 (7)	305 (44)	230 ° C	4679 (2)	20 (17)	35 (8)	549 (33)
240 ° C	3936 (0,1)	28 (3,3)	26 (1)	713 (13)	240 ° C	4883 (0,1)	31 (1)	21 (16)	419 (3)	240 ° C	5061 (5)	17 (21)	30 (5)	433 (1)
250 ° C	4623 (2,3)	28 (5,0)	23 (1,8)	624 (1)	250 ° C	4878 (3)	36 (6,5)	31 (7)	599 (19)	250 ° C	4709 (1)	14 (2,0)	28 (8)	493 (20)
270 ° C	4451 (0,1)	28 (6,9)	24 (6,6)	550 (15)	260 ° C	4813 (1,2)	32 (1,1)	26 (1)	616 (15)	260 ° C	4670 (1)	15 (1)	30 (1)	425 (1)
	DIRECTION RADIALE					DIRECTION RADIALE					DIRECTION RADIALE			
	Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)-A20	fms (kHz)		Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)-A20	fms (kHz)		Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)-A20	fms (kHz)
NATUREL	2189 (0,5)	41 (0,8)	13 (0,5)	590 (0,3)	NATUREL	2118 (2)	46 (7)	15,2 (24)	276 (2)	NATUREL	2280 (1)	53 (7)	22 (4)	420 (58)
230 ° C	2522 (1)	44 (11,4)	18 (25)	534 (16)	230 ° C	2229 (2)	52 (8)	20 (12)	283 (5)	230 ° C	2343 (2)	53 (4)	21 (9)	529 (4)
240 ° C	2591 (2,7)	40 (2,1)	15 (28)	608 (28)	240 ° C	2029 (5)	51 (9)	17 (5)	311 (1)	240 ° C	2078 (11)	55 (9)	21 (8)	386 (61)
250 ° C	2382 (0,2)	42 (0,5)	16 (4)	480 (0,1)	250 ° C	2068 (0,2)	49 (3)	17 (10)	295 (7)	250 ° C	1898 (1)	56 (2)	18 (1)	238 (1)
270 ° C	2321 (0,3)	41 (0,8)	15 (0,1)	634 (3,1)	260 ° C	2030 (0,3)	50 (3)	17 (20)	298 (6)	260 ° C	2256 (3)	54 (1)	20 (16)	533 (1)
	DIRECTION TANGENTIELLE					DIRECTION TANGENTIELLE					DIRECTION TANGENTIELLE			
	Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)-A10	fms (kHz)		Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)-A10	fms (kHz)		Vitesse (m/s)	Ac (dB)	Ams (dB)-A10	fms (kHz)
NATUREL	1605 (0,7)	58 (2)	13 (13)	220 (0,1)	NATUREL	1066 (7)	68 (1)	15 (5)	146 (8)	NATUREL	1824 (1)	65 (1)	10 (19)	389 (26)
230 ° C	1588 (11)	57 (3)	14 (22)	343 (26)	230 ° C	1143 (9)	66 (4)	14 (6)	350 (20)	230 ° C	1798 (1)	66 (1)	4 (2)	284 (8)
240 ° C	1795 (3)	55 (1)	10 (6)	209 (0,1)	240 ° C	1041 (1)	65 (5)	13 (9)	289 (63)	240 ° C	1828 (4)	65 (3)	4 (53)	221 (1)
250 ° C	1566 (1)	63 (5)	14 (3,5)	241 (4)	250 ° C	1080 (4)	64 (3)	12 (5)	438 (2)	250 ° C	1911 (1)	68 (1)	7 (5)	279 (3)
270 ° C	1443 (2)	68 (3)	17 (8)	250 (6)	260 ° C	1063 (3)	72 (4)	15 (20)	183 (2)	260 ° C	1808 (1)	70 (1)	7 (5)	286 (17)

HETRE 5 MHz	PLAN		LR			
	VOLconv (m/s)	Ac OLc (dB)	VOT (m/s)	AcOT (dB)	Ams - A30(dB)	fms (kHz)
NATUREL	4212 (0,2)	51 (7,3)	1538 (0,3)	38 (1)	9 (7)	337 (2)
230 ° C	4118 (0,3)	52 (3)	1750 (0,1)	33 (1)	8 (2)	321 (1)
240 ° C	3736 (0,4)	58 (1,3)	1842 (1,4)	33 (3,8)	8 (12)	323 (1)
250 ° C	4453 (0,8)	55 (2,5)	1641 (0,8)	36 (4,1)	8 (1)	321 (1)
260 ° C	4233 (0,5)	53 (4,3)	1608 (0,7)	35 (7,4)	8 (7)	315 (3)
	PLAN		LT			
NATUREL	4225 (0,3)	48 (1)	1277 (0,1)	38 (1,5)	10 (6)	273 (2)
230 ° C	4065 (2,8)	48 (2)	1397 (0,1)	37 (6)	9 (15)	321 (1)
240 ° C	3766 (1,5)	54 (5,2)	1450 (0,3)	38 (4,7)	12 (5)	400 (13)
250 ° C	4560 (0,6)	50 (3,2)	1315 (0,6)	36 (0,9)	14 (8)	514 (14)
260 ° C	4611 (0,1)	51 (5,9)	1254 (2,3)	39 (0,9)	12 (13)	535 (4)
	PLAN		RL			
NATUREL	2187 (6)	62 (1,3)	1574 (0,1)	41 (3,6)	12 (4)	382 (3)
230 ° C	2335 (0,7)	60 (2,8)	1776 (0,4)	39 (0,7)	13 (6)	349 (8)
240 ° C	2387 (0,7)	60 (3,2)	1839 (0,2)	35 (4,7)	17 (4)	318 (1)
250 ° C	2189 (0,6)	58 (4,8)	1674 (0,7)	41 (2)	10 (7)	370 (1)
260 ° C	2137 (0,1)	61 (0,8)	1640 (0,5)	40 (0,2)	12 (1)	424 (10)
	PLAN		RT			
NATUREL	2257 (9,7)	65 (1,8)	913 (0,7)	49 (1,4)	16 (11,2)	211 (11,7)
230 ° C	2436 (4,7)	66 (2,3)	1030 (1)	47 (0,7)	16 (3)	200 (1)
240 ° C	2450 (0,3)	66 (0,9)	1070 (0,3)	45 (0,6)	13 (25)	257 (23)
250 ° C	2207 (1,9)	64 (1,7)	921 (1,3)	50 (3,1)	16 (8)	209 (13)
260 ° C	2133 (0,4)	64 (0,1)	876 (1,4)	50 (4,1)	17 (4)	213 (2)
	PLAN		TL			
NATUREL	*****	*****	1234 (0,1)	51 (1,3)	19 (18)	131 (1)
230 ° C	*****	*****	1403 (1,3)	45 (3,4)	17 (16)	372 (8)
240 ° C	*****	*****	1438 (1,5)	41 (3,3)	16 (3)	333 (1)
250 ° C	*****	*****	1328 (0,1)	47 (1,3)	16 (19)	133 (3)
260 ° C	*****	*****	1270 (1,3)	50 (3,7)	21 (2)	126 (8)
	PLAN		TR			
NATUREL	1243 (0,2)	68 (3,8)	901 (0,9)	52 (1)	17 (6)	271 (22)
230 ° C	1518 (11,2)	63 (5,2)	625 (5,2)	49 (3,6)	19 (8)	263 (12)
240 ° C	1444 (1,3)	64 (3,6)	1059 (7,2)	51 (2,8)	19 (17)	258 (19)
250 ° C	1292 (5,5)	67 (1,5)	927 (1)	50 (3,6)	20 (6)	300 (9)
260 ° C	1270 (0,1)	66 (2)	865 (0,7)	52 (0,7)	19 (5)	304 (4)

PEUPLIER	PLAN LR					
	VOLconv (m/s)	Ac OLc (dB)	VOT (m/s)	AcOT (dB)	Ams - A30(dB)	fms (kHz)
NATUREL	4233 (0,5)	53 (2,3)	1608 (0,7)	4611 (10)	8 (6)	280 (1)
230 ° C	5544 (3)	47 (2,8)	1720 (1)	5752 (1,8)	14 (7)	270 (4)
240 ° C	5949 (4,2)	54 (4,8)	1615 (1)	5844 (0,3)	10 (11)	285 (3)
250 ° C	5909 (1,5)	50 (4,4)	1572 (0,7)	5891 (0,7)	9 (12)	288 (2)
260 ° C	5711 (0,9)	52 (4,5)	1584 (2)	5747 (2,1)	11 (12)	280 (1)
	PLAN LT					
NATUREL	4611 (10)	51 (5,9)	1254 (2,3)	39 (0,9)	11 (10)	275 (3)
230 ° C	5752 (1,8)	48 (6,0)	1316 (1,7)	38 (5,4)	13 (8)	300 (5)
240 ° C	5844 (0,3)	52 (2,3)	1283 (1,6)	41 (1,4)	13 (26)	322 (1)
250 ° C	5891 (0,7)	49 (8)	1250 (2,3)	40 (0,5)	11 (4)	443 (41)
260 ° C	5747 (2,1)	50 (2,7)	1181 (0,7)	41 (3,8)	12 (1)	239 (0,5)
	PLAN RL					
NATUREL	2137 (0,1)	61 (0,8)	1640 (0,5)	40 (0,2)	13 (10)	324 (3)
230 ° C	2085 (0,9)	65 (3,8)	1632 (2,2)	44 (1,7)	14 (9)	365 (7)
240 ° C	2036 (0,4)	61 (6,8)	1548 (0,1)	39 (1,8)	14 (7)	333 (1)
250 ° C	2020 (5,4)	59 (4,1)	1527 (0,4)	40 (0,8)	14 (2)	326 (1)
260 ° C	2009 (2,2)	65 (1)	1535 (2,2)	43 (7,2)	16 (14)	332 (1)
	PLAN RT					
NATUREL	2133 (0,4)	72 (0,1)	626 (4,5)	63 (0,2)	27 (7)	231 (2)
230 ° C	2089 (0,5)	84 (4,3)	650 (3,6)	72 (3,4)	30 (10)	90 (45)
240 ° C	2043 (0,9)	62 (5,4)	557 (2,9)	64 (2,2)	28 (2)	326 (2)
250 ° C	2031 (4,2)	70 (6,4)	645 (5,8)	61 (2,1)	25 (5)	223 (8)
260 ° C	2044 (2,8)	75 (0,3)	640 (0,1)	64 (7,1)	29 (10)	189 (14)
	PLAN TL					
NATUREL	*****	*****	1273 (3,7)	64 (6,7)	19 (10)	120 (1)
230 ° C	*****	*****	1328 (5,7)	68 (6,1)	26 (5)	127 (6)
240 ° C	*****	*****	1199 (0,3)	61 (7,5)	20 (4)	122 (1)
250 ° C	*****	*****	1241 (0,2)	62 (2,3)	19 (3)	123 (1)
260 ° C	*****	*****	1289 (3)	62 (3,8)	22 (4)	120 (1)
	PLAN TR					
NATUREL	1266 (4,5)	89 (5)	613 (5,3)	70 (2,9)	29 (1)	179 (40)
230 ° C	1319 (3,7)	82 (6,2)	819 (6,2)	67 (4,7)	28 (6)	158 (10)
240 ° C	1214 (2,9)	83 (3,1)	831 (3,1)	67 (2,9)	30 (5)	163 (2)
250 ° C	1006 (8,8)	82 (3,3)	821 (3,3)	64 (5)	29 (11)	256 (21)
260 ° C	1195 (2)	86 (10,8)	864 (10,8)	70 (3,3)	31 (2)	115 (4)

DOUGLAS	PLAN		LR			
	VOLconv (m/s)	Ac OLc (dB)	VOT (m/s)	AcOT (dB)	Ams - A30(dB)	fms (kHz)
NATUREL	4262 (9,4)	55 (1,1)	1539 (7,4)	43 (9,1)	9 (3)	240 (47)
230 ° C	4891 (4,3)	57 (3,1)	1531 (2,1)	41 (5,8)	12 (20)	265 (24)
240 ° C	4902 (0,3)	51 (4)	1517 (2,9)	39 (2,9)	10 (23)	255 (25)
250 ° C	4811 (3,8)	52 (0,3)	1504 (5,2)	40 (0,4)	10 (9)	229 (1)
260 ° C	4691 (4,9)	54 (3,2)	1494 (0,8)	38 (0,4)	11 (20)	430 (43)
	PLAN		LT			
NATUREL	4285 (4,5)	60 (10)	1698 (6)	43 (14,3)	14 (13)	212 (6)
230 ° C	4689 (3,3)	63 (6,2)	1580 (1,6)	50 (2,8)	17 (12)	145 (5)
240 ° C	5051 (0,3)	53 (5)	1549 (1,6)	45 (10,8)	13 (3)	409 (64)
250 ° C	4733 (0,1)	53 (2,7)	1350 (0,6)	46 (0,1)	16 (7)	150 (1)
260 ° C	4783 (3,2)	54 (1,6)	1316 (0,2)	48 (3,1)	16 (7)	310 (73)
	PLAN		RL			
NATUREL	*****	*****	1758 (0,4)	40 (0,7)	17 (2)	585 (1)
230 ° C	2180 (2,5)	70 (1,9)	1499 (0,7)	52 (0,5)	20 (6)	140 (10)
240 ° C	1592 (0,8)	55 (2,3)	1420 (4,8)	53 (3,5)	24 (9)	192 (2)
250 ° C	*****	*****	1522 (0,1)	56 (2)	21 (16)	150 (1)
260 ° C	2072 (1,1)	54 (1,6)	1471 (0,4)	51 (0,4)	22 (4)	715 (50)
	PLAN		RT			
NATUREL	*****	*****	580 (10)	59 (11)	33 (5)	185 (42)
230 ° C	2262 (7,9)	77 (8)	712 (2,3)	54 (8)	38 (5)	157 (42)
240 ° C	1581 (3,8)	73 (3,0)	678 (1)	66 (10)	36 (10)	216 (10)
250 ° C	2143 (9,9)	77 (7,8)	621 (3,1)	83 (3,1)	38 (4)	155 (23)
260 ° C	2170 (4,3)	77 (3)	*****	*****	39 (6)	585 (82)
	PLAN		TL			
NATUREL	*****	*****	1241 (1,2)	64 (9)	22 (7)	120 (1)
230 ° C	*****	*****	1363 (0,6)	55 (2,1)	18 (6)	140 (10,1)
240 ° C	*****	*****	1416 (3,3)	52 (2,7)	17 (2)	176 (37)
250 ° C	*****	*****	1488 (2,3)	56 (2,4)	22 (4)	355 (14)
260 ° C	*****	*****	1347 (3,4)	55 (0,1)	20 (1)	200 (1)
	PLAN		TR			
NATUREL	*****	*****	554 (0,9)	72 (6)	27 (13)	132 (1)
230 ° C	1413 (4,3)	73 (1,0)	696 (1)	65 (1,5)	28 (3)	280 (1)
240 ° C	1503 (4,9)	69 (7,1)	624 (12,9)	64 (5,6)	27 (4)	220 (64)
250 ° C	1484 (5,2)	76 (8,3)	575 (3,1)	49 (0,1)	33 (2)	188 (21)
260 ° C	1320 (5,7)	77 (2,7)	539 (2,8)	71 (2,1)	32 (8)	105 (5)

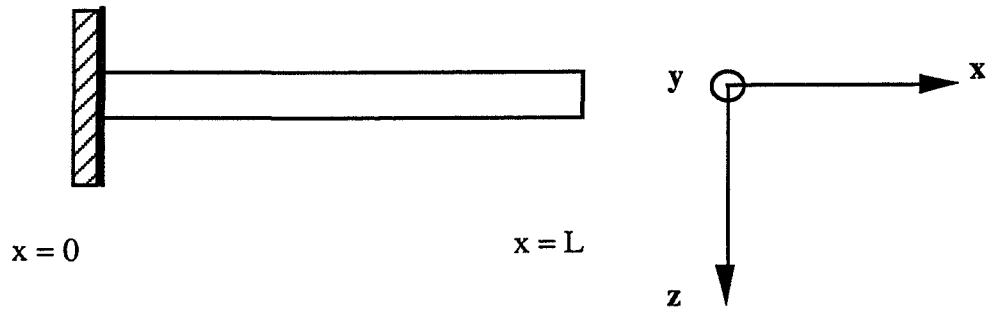
ANNEXE VI

MISE EN EQUATIONS
DES VIBRATIONS DE
POUTRES

ANNEXE VI : MISE EN EQUATIONS DES VIBRATIONS DE POUTRE

A5.1. Poutres en flexion

Considérons une poutre rectiligne taillée selon les plans de symétrie du matériau , soumise à un effort de flexion pure en vibration libre.



Soient T : effort tranchant suivant z

M : moment de flexion suivant y

w : déplacement selon z

Pour une section plane de la poutre , nous avons les équations suivantes :

1/ somme sur x :

$$\frac{dT}{dx} = 0$$

2/ équation des moments sur y

$$\frac{dM}{dx} + T = 0$$

avec $M(x) = \frac{EI}{R(x)}$

E module d'Young

I moment géométrique / axe y

R rayon de courbure de la déformée

L'équation cinématique qui régit R est la suivante :

$$R^{-1}(x) = - \frac{\frac{d^2w(x)}{dx^2}}{\left[1 + \left(\frac{dw}{dx}\right)^2\right]^{\frac{3}{2}}}$$

Dans l'hypothèse des petites déformations, on peut écrire

$$R^{-1}(x) = \frac{d^2w(x)}{dx^2}$$

$$M(x) = -EI \frac{d^2w(x)}{dx^2}$$

$$T(x) = EI \frac{d^3w(x)}{dx^3} \quad \text{d'où} \quad \frac{dT}{dx} = EI \frac{d^4w(x)}{dx^4}$$

en dynamique, on a :

$$\frac{dT}{dx} = -\rho s \frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial t^2}$$

L'équation du mouvement de la poutre en flexion dynamique est donc la suivante :

$$\boxed{EI \frac{\partial^4 w(x,t)}{\partial x^4} = -\rho s \frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial t^2}} \quad (1)$$

Cette équation se résout par séparation des variables en écrivant que :

$$w(x,t) = X(x) f(t)$$

$$\text{et } f(t) = A \cos(\omega t) + B \sin(\omega t)$$

L'équation du mouvement devient alors :

$$\boxed{\frac{d^4 X(x)}{dx^4} = \frac{\omega^2 \rho S}{EI} X(x)}$$
(2)

En posant $\frac{\omega^2 \rho S}{E.I} = k^4$, l'équation se met sous la forme :

$$\boxed{\frac{d^4 X(x)}{dx^4} = k^4 X(x)}$$
(3)

dont les solutions sont de la forme $X = e^{sx}$

avec s racine de $s^4 - k^4 = 0$ qui peut donc prendre les valeurs $k, -k, ik, -ik$.

La solution de l'équation est donc une combinaison linéaire des fonctions $e^{kx}, e^{-kx}, e^{-ikx}, e^{ikx}$ ou de $\cos kx, \sin kx, \operatorname{ch} kx$ et $\operatorname{sh} kx$.

$$X = C_1 \cos kx + C_2 \operatorname{ch} kx + D_1 \sin kx + D_2 \operatorname{sh} kx$$

Les constantes s'obtiennent en considérant les conditions aux limites (qui peuvent être différentes suivant le mode de fixation de la poutre).

Dans le cas d'un encastrement en $x = 0$

on a quelque soit t :

$$(1) w(0 , t) = 0$$

$$(2) \frac{\partial w(0,t)}{\partial x} = 0$$

et dans le cas d'une extrémité libre en $x = L$

on a quelque soit t

$$(3) \frac{\partial^2 w(L,t)}{\partial x^2} = 0 \quad (\text{moment fléchissant nul})$$

$$(4) \frac{\partial^3 w(L,t)}{\partial x^3} = 0 \quad (\text{effort tranchant nul})$$

La vérification de ces conditions conduit à un système homogène dont le déterminant doit être nul puisqu'il admet des solutions non nulles. Le calcul de ce déterminant conduit à l'équation aux pulsations propres

$$\boxed{1 + \cos kl \cdot \text{ch}kl = 0} \quad (4)$$

Les solutions k_1, k_2, \dots, k_n de cette équation sont les fréquences de résonance associées aux modes de vibration 1, 2, ..., n.

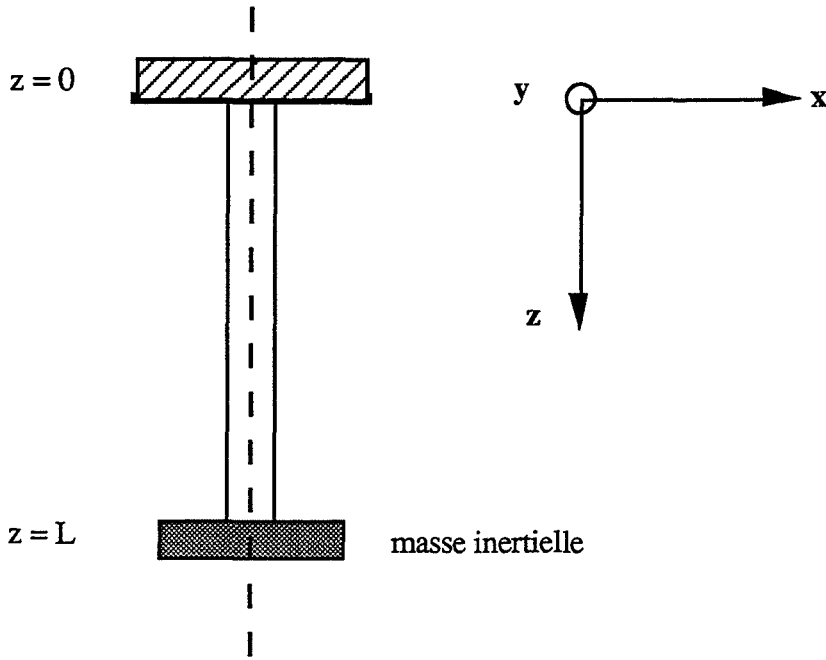
Pour une fréquence de résonance, le calcul du module d'Young s'obtient à partir de la relation $k^4 = \frac{\omega^2 \rho S}{E \cdot I}$ soit pour une poutre de section rectangulaire :

$$\boxed{E = \frac{48\pi^2}{\beta_n^4} \frac{M(a)^3}{b(b)} f_n^2} \quad (5)$$

β_n est la n-ième solution de (4), M la masse de la poutre, L sa longueur, b sa largeur et h son épaisseur.

A5.2. Poutres en torsion

Soit une poutre à section rectangulaire taillée suivant les plans de symétrie du matériau. Seule la torsion pure est envisagée, le gauchissement étant négligé. Une masse additionnelle d'inertie est suspendue à l'extrémité libre de la barre.



Soient C_T : la rigidité à la torsion
 M : le couple de torsion

$$\text{On a } M = C_T \frac{\partial \theta}{\partial z}$$

En dynamique l'équation des moments sur z s'écrit pour une section

$$\frac{\partial M}{\partial z} = \rho I_p \frac{\partial^2 \theta (z, t)}{\partial t^2} \quad \text{avec } I_p \text{ moment polaire de la section}$$

L'équation du mouvement est donc la suivante :

$$\boxed{C_T \frac{\partial^2 \theta (z, t)}{\partial z^2} = \rho I_p \frac{\partial^2 \theta (z, t)}{\partial t^2}} \quad (1)$$

Saint - Venant a démontré que la rigidité à la torsion d'un matériau orthotrope de section rectangulaire est donnée par la formule :

$$\boxed{C_T = G_{xz} b h^3 \beta (c)} \quad (2)$$

b étant la largeur et h l'épaisseur

C est donné par la formule

$$C = \frac{b}{h} \sqrt{\frac{G_{yz}}{G_{xz}}} \quad (3)$$

et

$$\beta(c) = \frac{32c^2}{\pi^2} \sum_{k=1,3,\dots}^{\infty} \frac{1}{k^4} \left(1 - \frac{2c}{k\pi} \operatorname{th} \frac{k\pi}{2c} \right)$$

De la même façon que précédemment, l'équation (1) est résolue par séparation des variables

$$\theta (x, t) = X(z) f(t) \text{ et } f (t) = A \cos \omega t + B \sin \omega t$$

d'où l'équation finale

$$\frac{d^2 X(z)}{dz^2} = - X(z) \frac{\omega^2 \rho I_p}{C_p} \quad (4)$$

Si l'on pose $\gamma^2 = \frac{\omega^2 \rho I_p L^2}{C_T}$

$$X(z) = C_1 \cos \frac{\gamma z}{L} + C_2 \sin \frac{\gamma z}{L}$$

soit la solution de l'équation du mouvement

$$\theta (z, t) = (A \cos \omega t + B \sin \omega t) (C_1 \cos \frac{\gamma z}{L} + C_2 \sin \frac{\gamma z}{L})$$

Les constantes dépendent des conditions aux limites

Si en $z = 0$, la poutre est encastree on a:

$$\text{quel que soit } t, \theta (0, t) = 0 \text{ ce qui implique } C_1 = 0$$

et si en $z = L$ se trouve la masse inertielle, on a :

on a pour tout t , $M(L, t) = -J \frac{\partial^2 \theta(L, t)}{\partial t^2}$ (J étant l'inertie de la masse additionnelle)

ce qui permet de trouver l'équation aux pulsations propres

$$\boxed{\gamma \operatorname{tg} \gamma = \frac{\rho L I_p}{J}}$$
(5)

dont les n racines γ_n correspondent aux n modes du système .

Le couple de torsion C_T se calcule à partir de la fréquence de résonance par la formule

$$C_T = \frac{4\pi^2 f_n^2 \rho I_p L^2}{\gamma_n^2}$$

et à partir de la formule (2), il vient :

$$\boxed{G_{xz} = \frac{C_T}{bh^3 \beta(c)} = \frac{4\pi^2 f_n^2 \rho I_p L^2}{\gamma_n^2 bh^3 \beta(c)}}$$
(6)

Cette formule peut être simplifiée si l'on considère que J , l'inertie de la masse additionnelle est très supérieure à celle de la tige . Dans ces conditions :

$$\gamma \operatorname{tg} \gamma = \frac{\rho L I_p}{J} \approx \gamma^2$$

Le module est alors donné par la formule :

$$\boxed{G_{xz} = \frac{4\pi^2 f_n^2 L J}{bh^3 \beta(c)}}$$
(7)

N° D'ORDRE: 81 ED

NOM: BOHNKE ISABELLE

SUJET: ETUDE EXPERIMENTALE ET THEORIQUE DES TRAITEMENTS THERMIQUES DU BOIS.
CARACTÉRISATION PHYSICO-MÉCANIQUE DES BOIS TRAITES.

SPÉCIALITÉ: ENERGÉTIQUE

MOTS CLÉS: BOIS - PYROLYSE - TRANSFERTS - MODELISATION - PROPRIETES MECANIQUES-
RHEOLOGIE- ULTRASONS .

RÉSUMÉ:

Le bois est connu pour être un matériau complexe, car hétérogène, anisotrope et hygroscopique. Lorsqu'il est soumis à un type particulier de traitements thermiques, appelé **réтификаtion** et consistant en une pyrolyse ménagée à basses températures (200-280 °C), il présente une diminution notable de son caractère hydrophile, une meilleure stabilité dimensionnelle et une résistance accrue aux attaques des micro-organismes. Le présent travail est consacré d'une part à l'étude expérimentale de ces traitements thermiques, c'est-à-dire la mesure des températures pour différents rayons dans un cylindre de bois traité en bain pour lequel on a fait varier les paramètres suivants: essence de bois, diamètre, humidité initiale du barreau, température de consigne et nature du bain; d'autre part à la modélisation des phénomènes de transfert de chaleur et de masse prenant en compte la conduction, la vaporisation de l'eau contenue dans le bois, la décomposition chimique du bois, et les variations de la densité, du taux d'humidité, de la conductibilité thermique et de la capacité calorifique. Pour chercher à optimiser les conditions dans lesquelles le traitement se déroule et qui conditionnent la qualité finale du produit, nous avons cherché à caractériser les propriétés physico-mécaniques du bois traité par une méthode de contrôle non-destructif par spectroscopie ultrasonore. En complément de cette méthode, nous avons utilisé d'autres méthodes de caractérisation: vibrations forcées de poutres, essais statiques de flexion et de compression et analyse thermo-mécanique. Tous les résultats de ces analyses concordent et mettent en évidence pour les bois étudiés (hêtre, peuplier, douglas) une variation discontinue des propriétés aux alentours de 240°C pour un temps de traitement de 15 mn. Nous avons pu également remarquer une fragilisation du matériau massif, mais fortement minimisée quand le matériau de départ est humide et traité en bain.