NNT : 2016SACLC074

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
CENTRALESUPELEC

ÉCOLE DOCTORALE N°579
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences

Spécialité de doctorat : Génie des procédés

Par

M. Wei Ai

Glissement moléculaire dans les matériaux lignocellulosiques: mesures de perméabilité apparente et identification de paramètres morphologiques

Thèse présentée et soutenue à Châtenay-Malabry, le 20 octobre 2016 :

Composition du Jury :

M. Denis Flick, Professeur, AgroParisTech, Président du Jury
Mme Irina Graur, Professeure, IUSTI, Rapporteur
M. Romain Rémond, Maître de Conférences HDR, LERMAB, Rapporteur
M. Patrick Perré, Professeur, CentraleSupélec, Directeur de thèse
M. Hervé Duval, Maître de Conférences HDR, CentraleSupélec, Encadrant
M. Floran Pierre, Ingénieur de Recherche, CentraleSupélec, Encadrant

J'ignore ce que le monde pensera de mes œuvres,

mais il me semble que j'ai été comme un enfant jouant au bord de la mer,

trouvant ici un galet mieux poli,

là une coquille plus agréablement nacrée,

tandis que l'océan de la vérité m'offrait son immensité inexplorée.

Sir Issac NEWTON.

A mes parents

Remerciements

Mes premiers remerciements vont à M. Patrick Perré, directeur de thèse, pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et m'avoir accueilli dans son laboratoire, m'avoir donné des conseils très précieux pour réaliser ce travail, pour le temps qu'il m'a consacré pendant la réalisation de ce manuscrit et pour son enthousiasme et la confiance qu'il m'a témoigné tout au long de la thèse. Ce travail doit beaucoup à son dévouement, remarquable par son expertise, son recul scientifique, sa disponibilité et son implication dans ce doctorat.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à M. Hervé Duval, co-directeur de thèse, pour m'avoir encadré, pour m'avoir assuré la réalisation de la thèse, pour le temps consacré à répondre à toutes mes interrogations, pour ses conseils très précieux sur la modélisation, l'interprétation des résultats et surtout pour sa confiance qu'il a donnée pendant l'encadrement de thèse.

Je voudrais remercier M. Floran Pierre, co-directeur de thèse pour m'avoir encadré en particulier sur la partie expérimentale de la thèse (montage du dispositif expérimental, échantillonnage…) et pour ses corrections sur la partie d'anatomie du bois, la partie d'échantillonnage et la partie d'introduction et conclusion dans ce manuscrit.

Je voudrais également remercier M. Denis Flick, professeur du Génie Industriel Alimentaire (GENIAL, UMR 1145, AgroParisTech), pour m'avoir accepté d'examiner mon travail et fait l'honneur de présider mon jury de thèse.

Je remercie Mme Irina Graur, professeure d'Institut Universitaire des Systèmes Thermiques Industriels (IUSTI, UMR-CNRS 7343) qui j'ai eu la chance de la rencontrer pendant la conférence NEGF15 à Eindhoven, pour m'avoir accepté d'examiner mon travail et d'être le rapporteur de ma thèse.

Je remercie M. Romain Rémond, maître de conférences HDR du Laboratoire d'Etude et de Recherche sur le Matériau Bois (LERMAB, EA 4370), pour m'avoir accepté d'examiner mon travail et d'être le rapporteur de ma thèse.

Je ne saurais oublier d'exprimer ici toute ma gratitude à toutes les personnes qui m'ont aidé au cours du travail de thèse : notamment à M. Joël Casalinho, ingénieur d'études, pour son aide sur le développement du dispositif expérimental de perméation (design du support d'échantillon, achats de produits, régulateur PID, montage des câbles électriques…); à M. Jean Trubuil, adjoint technique, pour son soutien technique et l'usinage des pièces (port échantillon du bois...) dédiées à mesurer la perméabilité apparente du bois ; à M. Thierry Martin, assistant ingénieur, pour l'usinage du support dédié à la perméation au gaz de la membrane ; à Mme Nathalie Ruscassier, ingénieur d'études, pour son aide à mesurer les échantillons du bois et les membranes track-etched avec la microscopie électronique à balayage (MEB, FEI Quanta 200).

Je tiens à remercier tous les personnels du LGPM y compris les anciens membres que j'ai rencontrés pendant la première année de thèse qui m'ont réservé un accueil chaleureux et m'ont donné les soutiens que j'estime beaucoup et n'oublierai jamais.

Finalement un grand merci à mes parents pour m'avoir toujours soutenu en particulier pour les moments difficiles pendant mes séjours en France.

Table des matières

Liste des figures 3
Liste des tableaux 5
Nomenclature 6
Introduction générale 9
I. Revue de littérature 12
1. Introduction 12
2. Anatomie du bois 12
2.1. Fonctions et formation du bois dans l'arbre 12
2.2. Le plan ligneux 13
2.3. Eléments anatomiques 14
2.4. La paroi cellulaire 18
2.5. Les ponctuations et perforations des parois cellulaires 19
2.6. Masse volumique et infra-densité 22
3. Perméabilité 23
3.1. La loi de Darcy 23
3.2. Relation avec la porosité 24
3.3. Glissement moléculaire 28
3.4. Modèles de glissement moléculaire 29
4. Perméabilité du bois 39
4.1. Mesure de perméabilité aux gaz 39
4.2. Variabilité et anisotropie du bois 41
4.3. Effet de l'humidité 45
4.4. Effet de la longueur 45
4.5. Modèles morphologiques simples de perméabilité du bois 45
5. Conclusion 53
II. Matériels et Méthodes 54
1. Introduction 54
2. Echantillonnage 54
2.1. Le bois 54
2.2. Les panneaux de fibres de bois 55
2.3. Le béton cellulaire 56
2.4. La membrane 56
3. Dispositif expérimental de mesure de la perméabilité apparente 57
3.1. Le support échantillon, étanche et adapté aux matériaux étudiés 58

3.2. Mesure de la pression 60
3.3. La régulation thermique 62
3.4. Le protocole de mesure 63
4. Calcul de la perméabilité 64
4.1. En régime isotherme 64
4.2. En régime réel 65
4.3. Détermination des coefficients de transfert thermique $\boldsymbol{hint}$ et $\boldsymbol{hext}$ 67
4.4. Comportement du dispositif expérimental dans les régimes isotherme, adiabatique et réel 68
4.5. Fiabilité du dispositif expérimental 76
5. Modèles théoriques du bois : modèle en séries de pores non identiques 78
5.1. Modèle du cylindre 79
5.2. Modèle de fente 80
5.3. Modèle de l'orifice 81
6. Conclusion 81
III. Un nouveau dispositif pour mesurer la perméabilité gazeuse sur une large plage de pression : caractérisation de glissement moléculaire sur les différentes espèces du bois et les matériaux à base de bois 82
1. Introduction 82
2. A Novel Device to Measure Gaseous Permeability over a Wide Range of Pressure: Characterization of Slip Flow for Various Wood Species and Wood-Based Materials 83
IV. Identification de paramètres morphologiques du bois à partir de mesures de perméabilité au gaz 112
1. Introduction 112
2. Identification of wood's morphological parameters from gas permeability measurements 112
V. Conclusion et perspectives 134
VI. Annexe 136
VII. Références 140

Liste des figures

Figure I- 1. Les différentes parties du tronc d'un arbre : la moelle, le bois de cœur, l'aubier et l'écorce (cambium, écorce externe et écorce interne) avec ses tissus principaux (D'après Grosser 1977). 13
Figure I- 2. Les trois plans de référence du tronc d'arbre : le plan transversal (Tr), le plan radial (Ra) et le plan tangentiel (Tg) (Keller 1991). 14
Figure I- 3. Schéma d'un bloc de bois de pin. 15
Figure I- 4. Schéma d'un bloc de bois de hêtre 17
Figure I- 5. Schéma montrant la microstructure hiérarchique des différentes couches de la paroi cellulaire du résineux : P paroi primaire ; M lamelle moyenne ; S1 sous-couche interne ; S2 sous-couche intermédiaire ; S3 sous-couche externe ; W couche verruqueuse ; P et P' : paroi primaire de cellules adjacentes (D'après Ward et al. 1964). 18
Figure I- 6. Ponctuations simples du type cylindrique sur les parois latérales du bois du printemps d'un résineux. (Labbé 2002). 20
Figure I- 7. Ponctuation aréolée : ponctuation aréolée non aspirée (à gauche) (Domec et al. 2006), ponctuation aréolée dans le plan transversale (à droite, cliché ESEM, P. Perré). 21
Figure I- 8. Différents types de ponctuations : a ponctuation simple ; b ponctuation aréolée ; c ponctuation semi-aréolée. A ouverture ; C chambre ; T torus ; M lamelle mitoyenne ; S paroi secondaire (Siau 1984). 21
Figure I- 9. Schéma des éléments de vaisseaux de différentes essences du bois : a bouleau ; b chêne (élément de bois de printemps); c chêne (élément de bois d'été) ; 1 perforations ; 2 ponctuations latérales ; 3 ponctuations de champ de croisement (Bosshard 1974). 22
Figure I- 10. Les pores interconnectés et isolés et les fluides dans le milieu poreux (Coussy1991) 25
Figure I- 11. Le schéma du dispositif expérimental de Petty pour la mesure de la perméabilité gazeuse C : manostat cartésien ; R : réservoir du gaz ; P1 et P2 : manomètre à mercure pour le vide ; MM : manomètre à mercure différentiel ; OM : manomètre de pression d'huile différentiel ; S : échantillon ; N : vanne à pointeau ;1 : dessiccateur du gel de silice ; D2 : dessiccateur P2O5 ; FM : appareil pour mesurer le débit volumique, composé par les burettes, les rotamètres (Siau 1984). 40
Figure I- 12. Dispositif expérimental pour mesurer la perméabilité gazeuse utilisé par Petty (Siau 1984). 41
Figure I- 13. Schéma du modèle de pores identiques en parallèle (Siau 1984). 46
Figure I- 14. Schéma d'après le modèle de Kozeny-Carman: le flux circuit dans un chemin tortueux du milieu poreux. 47
Figure I- 15. Perméabilité longitudinale en fonction de l'inverse de pression moyenne pour le frêne blanc : mesures expérimentales (points) et courbe d'interpolation par la méthode de moindre carré. (Siau, 1984). 48
Figure I- 16. Schéma d'après le modèle de Petty : le grand cylindre (longueur : $L1$, diamètre : $D1$) représente la trachéide chez les résineux ou le vaisseau chez les feuillus, les petits cylindres (longueur : $L2$, diamètre : $D2$) représentent les ponctuations entre les gros pores. 48
Figure I- 17. Schéma du modèle I (Comstock 1970). 51
Figure I- 18. Schéma du modèle II (Comstock 1970). 52

Figure II- 1. Echantillonnage du bois (épicéa et hêtre) dans les directions longitudinales (L), radiale (R) et tangentielle (T). 55
Figure II- 2. Echantillons de hêtre (à gauche) et épicéa (à droite). A) direction longitudinale, B) direction radiale et C) direction tangentielle. 55
Figure II- 3. Echantillons de MDF (à gauche) de LDF (au milieu) et de béton cellulaire (à droite). 56
Figure II- 4. Micrographie d'une membrane track-etched (NUCLPR 47 mm 10.0 µm) obtenue par microscopie électronique à balayage (MEB, FEI Quanta 200). 57
Figure II- 5. Dispositif expérimental : système de mesure (à gauche) et chaine d'acquisition (à droite). 58
Figure II- 6. Les supports échantillon "72D" (A), "18D"(B) et l'adaptateur pour membrane C). 59
Figure II- 7. Coupe schématiques des supports échantillon « 72D » à gauche et « 18D » à droite (remarque : les dimensions et proportions dans les schémas ne respectent pas strictement aux dimensions réelles). 60
Figure II- 8. Coupe schématique de l'adaptateur à membrane. 60

Figure II- 9. Capteur de pression RPS/DPS 8000, GE Druck (à gauche) et leur précision en fonction de la température et pression (données constructeur) (à droite). *61*
Figure II- 10. Evolution des pressions P1 et P2 enregistrées par les capteurs : évolution des pressions P1 et P2 pendant 6 heures d'enregistrement (à gauche) et un zoom sur l'évolution des pressions pendant un temps court pour montrer la différence de pression (à droite). *61*
Figure II- 11. Schéma de l'électrovanne (VAT série 26) à gauche et de la vanne tiroir (VAT série 01) à droite. *62*
Figure II- 12. Bride ISO-KF. Les dimensions correspondantes sont : DN (diamètre intérieur du tube) =16 mm, B=30mm et H=17,20 mm ; 2) Anneau de serrage complet (DN=16 mm, A=45 mm, B=61 mm et C= 16 mm) ; 3) Anneau de centrage (DN=16 mm, A=17 mm et B=16 mm). *62*
Figure II- 13. Schéma du dispositif expérimental *63*
Figure II- 14. Les relaxations des pressions $P1$ *et* $P2$ *en fonction du temps pour un échantillon de l'épicéa dans la direction tangentielle (en haut), le logarithme de l'évolution de leur différence (en bas à gauche) en fonction du temps sur l'ensemble des données et le zoom durant les derniers instants sous une faible différence de pression (en bas à droite).* *65*
Figure II- 15. Algorithme à simuler le comportement du gaz de notre dispositif expérimental dans le cas réel... *67*
Figure II- 16. Identification du coefficient du transfert thermique $hint$ *par minimisant l'écart, au sens des moindres carrées, entre les évolutions numérique et expérimentale de la pression.* *68*
Figure II- 17. Comportements cinétiques du gaz pour un échantillon très perméable à 20 mbar (volume de la chambre du gaz: 24 l, diamètre de l'échantillon: 18 mm, épaisseur de l'échantillon : 30 mm, pression moyenne : 20 mbar). Evolutions de la température et du logarithme de la différence de la pression pour $Kapp = 10 - 11{,}10 - 12\ et\ 10 - 13\ m^2$. *69*
Figure II- 18. Comportements cinétiques du gaz pour un échantillon perméable à 1000 mbar (volume de la chambre du gaz : 24 l, diamètre de l'échantillon : 18 mm, épaisseur de l'échantillon : 30 mm, pression moyenne : 1000 mbar). Evolutions de la température, du logarithme de la différence de la pression pour $Kapp = 10 - 11{,}10 - 12\ et\ 10 - 13\ m^2$. *71*
Figure II- 19. Comportements cinétiques du gaz pour un échantillon perméable (volume de la chambre du gaz : 24 l, diamètre de l'échantillon : 72 mm, épaisseur de l'échantillon : 10 mm, pression moyenne : 20 mbar). Evolutions de la température, du logarithme de la différence de la pression pour $Kapp = 10 - 11{,}10 - 12\ et\ 10 - 13\ m^2$. *73*
Figure II- 20. Comportements du dispositif pour un grand diamètre à 1000 mbar (volume de la chambre du gaz : 24 l, diamètre de l'échantillon : 72 mm, épaisseur de l'échantillon : 10 mm, pression moyenne : 1000 mbar). Evolutions de la température, du logarithme de la différence de la pression pour $Kapp = 10 - 11{,}10 - 12\ et\ 10 - 13\ m^2$. *75*
Figure II- 21. Evolution de la température dans le caisson isotherme à partir de la température ambiante (température de consigne = 30°C). *77*
Figure II- 22. Variations de pression dans les volumes V2 et V2 en absence de flux dans l'échantillon. *78*
Figure II- 23. Schéma du modèle en séries de pores non identiques. *79*

Liste des tableaux

Tableau I- 1. Coefficients $C1$et $C2$ pour le modèle du 2nd ordre proposés dans la littérature. 33
Tableau I- 2. Résumé des travaux expérimentaux sur la mesure de la perméabilité apparente du bois. 39
Tableau I- 3. Ordre de grandeur de la perméabilité longitudinale de quelques essences du bois d'après Siau (1984). 42
Tableau I- 4. Résumé des perméabilités intrinsèques du bois dans les différentes directions L, R et T. 43
Tableau I- 5. Résumé des perméabilités apparentes du bois en fonction de la pression moyenne. 44

Tableau II- 1. Caractéristiques des échantillons. 57

Nomenclature

Ac	constante dans l'équation de Klinkenberg	(-)
A	surface de l'échantillon	m^2
Bc	constante dans l'équation de Klinkenberg	(-)
C	constante proportionnelle à la perméabilité	(-)
C_1	coefficient du 1er ordre	(-)
C_2	coefficient du 2nd ordre	(-)
C_p	capacité thermique massique	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
C_V	capacité thermique à un volume constant	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
D	diamètre du tube	m
D_H	diamètre hydraulique	m
E_c	nombre d'Eckert	(-)
f_z	poids du gaz	$m.s^{-2}$
G_P^{tb}	débit massique normalisé dans le cylindre	$kg.s^{-1}$
g	conductance du réseau	(-)
g_1	conductance des gros pores	(-)
g_2	conductance des ponctuations	(-)
H	humidité du bois	(-)
h	dimension caractéristique du milieu poreux	m
h_{int}	coefficient du transfert thermique du côté intérieur des volumes	$W.K^{-1}.m^{-2}$
h_{ext}	coefficient du transfert thermique du côté extérieur des volumes	$W.K^{-1}.m^{-2}$
K	perméabilité intrinsèque du matériau	m^2
K_{app}	perméabilité apparente	m^2
K_L	perméabilité longitudinale	m^2
K_{L1}	perméabilité gazeuse des trachéides	m
K_{L2}	perméabilité gazeuse des ponctuations	m
Kn	nombre de Knudsen	(-)
K_T	perméabilité tangentielle	m^2
K_R	perméabilité radiale	m^2
k	conductivité thermique	$W.m^{-1}.K^{-1}$
k_0	facteur de forme de Kozeny-Carman	(-)
L	épaisseur de l'échantillon	m
l	pente de l'équation de Klinkenberg	(-)
L_0	dimension caractéristique du milieu poreux	m
L_1	longueur accumulée des trachéides	m
L_2	longueur accumulée des ponctuations	m
M	masse molaire du gaz	$kg.mol^{-1}$
m	pente de l'équation de Klinkenberg	(-)
$\dot{M}$	débit massique dans un tube	$kg.s^{-1}$
M_a	masse anhydre du bois	kg
Ma	nombre du Mach	(-)
$M_{après}$	masse de l'échantillon après l'imbibition	kg
M_{avant}	masse de l'échantillon avant l'imbibition	kg
M_{eau}	masse de l'eau dans le bois	kg
$\dot{M}^f$	débit massique dans la fente	$kg.s^{-1}$
$\dot{M}_{fm}^f$	débit massique en régime de glissement moléculaire dans la fente	$kg.s^{-1}$
M_H	masse du bois à certaine humidité H	kg
$\dot{M}^{or}$	débit massique dans l'orifice	$kg.s^{-1}$

$\dot{M}_{fm}^{or}$	débit massique en régime de glissement moléculaire dans l'orifice	$kg.s^{-1}$
$\dot{M}_{fm}^{tb}$	débit massique en régime de glissement moléculaire dans le tube	$kg.s^{-1}$
n	vecteur d'unité normal	(-)
n_1	nombre de trachéides en parallèle	(-)
n_2	nombre de ponctuations par trachéide	(-)
N_p	nombre de ponctuations en parallèle par unité de surface	(-)
N_{PL}	nombre de ponctuations en parallèle par unité de surface en longitudinal	(-)
N_{PT}	nombre de ponctuations en parallèle par unité de surface en tangentiel	(-)
N_s	nombre de cellules en série	(-)
N_{SL}	nombre de cellules en série en longitudinal	(-)
N_{ST}	nombre de cellules en série en tangentiel	(-)
p	contour de la marge annulaire de ponctuation	m
P_0	pression en aval du grand cylindre	Pa
P_1	pression en amont du tube cylindrique	Pa
P_2	pression en aval du tube cylindrique	Pa
P_{air}	pression de l'air dans le bois	Pa
P_{amont}	pression en amont du grand cylindre	Pa
P_{aval}	pression en aval du petit cylindre	Pa
P_m	pression moyen du gaz	Pa
$P_{mercure}$	pression de mercure exercée sur le bois	Pa
P_{mesure}	pression du gaz dans l'enceinte de mesure	Pa
P_r	nombre de Prandtl	(-)
$P_{référence}$	pression du gaz dans l'enceinte de référence	Pa
Q	débit volumique	$m^3.s^{-1}$
R	constante universelle des gaz parfaits	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
R_0	rayon du tube	m
r	rayon	m
R_e	nombre de Reynolds	(-)
S_{pore}	surface des pores	m^2
T	température	K
t	vecteur d'unité tangentiel	(-)
T_w	température de la paroi	K
u	vitesse du fluide	$m.s^{-1}$
U_t	vitesse tangentielle du fluide	$m.s^{-1}$
U_w	vitesse de la paroi du solide	$m.s^{-1}$
U_z	vitesse axiale du fluide	$m.s^{-1}$
V	volume du bois à certaine humidité H	m^3
V_a	volume des pores actifs au transport des particules fluides	m^3
$V_{échantillon}$	volume de l'échantillon	m^3
V_{mesure}	volume de l'enceinte de mesure	m^3
$V_{référence}$	volume de l'enceinte de référence	m^3
V_{pore}	volume des pores	m^3
V_s	volume du bois saturé	m^3
W^{tb}	probabilité de transmission pour le tube réduit	(-)
α	ratio de longueur accumulée de ponctuation par rapport à la longueur totale de trachéide	(-)
γ	ratio de la chaleur spécifique	(-)
ΔL^{tb}	longueur supplémentaire pour le tube	m
ΔP	différence de la pression d'un côté et d'autre de l'échantillon	Pa

δ_I	coefficient de raréfaction	(-)
ε	porosité du bois	(-)
ε_a	porosité active du bois	(-)
λ	libre parcours moyen	m
μ	viscosité dynamique du fluide	$Pa.s$
ξ_P^f	débit massique normalisé en régime de glissement moléculaire dans la fente	$kg.s^{-1}$
ξ_P^{or}	débit massique normalisé dans l'orifice	$kg.s^{-1}$
ρ	masse volumique de l'échantillon	$kg.m^{-3}$
ρ_a	masse volumique du bois anhydre	$kg.m^{-3}$
ρ_H	masse volumique du bois à certaine humidité H	$kg.m^{-3}$
ρ_i	infra-densité du bois	$kg.m^{-3}$
$\rho_{liquide}$	masse volumique du liquide mouillant	$kg.m^{-3}$
ρ_m	masse volumique de la matière ligneux du bois	$kg.m^{-3}$
σ	coefficient d'accommodation	(-)
σ_T	coefficient d'accommodation thermique	(-)
τ_i	moment tangentiel des molécules incidentes à la surface du solide	(-)
τ_r	moment tangentiel des molécules réfléchies à la surface du solide	(-)
τ_w	moment tangentiel des molécules réémises de la surface du solide	(-)
ϕ	ratio entre la perméabilité longitudinale et la perméabilité transversale	(-)

Introduction générale

Le bois est un matériau poreux naturel avec une microarchitecture bien hiérarchisée permettant le transfert de matière. Dans le bois vivant, la sève brute est transportée via un réseau poral constitué principalement de trachéides chez les résineux et de vaisseaux chez les feuillus. Les trachéides sont connectées entre-elles par des ponctuations aréolées, tandis que les éléments de vaisseaux sont connectés par des perforations. C'est le même réseau poral qui explique la perméabilité du matériau bois, avec quelques nuances par rapport à l'état fonctionnel du bois dans l'aubier de l'arbre : dans le duramen, certains éléments sont obstrués : ponctuations colmatées, ponctuations aréolées aspirées, développement de tylose dans les vaisseaux de certains feuillus.

La porosité multi-échelle du bois peut être caractérisée par l'analyse de coupes sériées ou la micro-tomographie. Néanmoins, ces méthodes d'imagerie restent difficiles pour accéder de façon statistique (taille et répartition) aux plus petits pores impliqués dans le cheminement des fluides. Ces petits pores, qui sont souvent inférieurs au micromètre, expliquent en effet la part majeure de la résistance à l'écoulement des fluides.

L'examen de la bibliographie montre qu'il y a une méthode alternative qui permet d'investiguer ces ponctuations. Nous avons donc décidé d'entreprendre une approche sur l'étude de la perméabilité gazeuse du bois à différents niveaux de pressions partant sur une approche originale développée par Petty : tirer profit des changements de régimes d'écoulement (de régime visqueux au régime de glissement moléculaire) dans les trachéides et les ponctuations suivant leurs tailles lorsque la pression est modifiée pour caractériser les tailles et interconnexions des pores. En jouant sur le libre parcours moyen du gaz traversant le milieu poreux, la mesure de perméabilité devient en effet une sonde macroscopique de pores de taille micrométrique. Avantage supplémentaire de cette méthode : la porosité sondée est la porosité interconnectée (ou porosité active).

L'objectif global de ce travail est de développer un dispositif expérimental innovant permettant de déterminer de façon fiable et efficace la perméabilité au gaz sur une large gamme de pression moyenne et de valeur de perméabilité intrinsèque. Ce dispositif est ensuite utilisé pour caractériser la perméabilité au gaz de deux essences de bois selon différentes directions et de matériaux à base de bois. Les variations de perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne du gaz sont ensuite analysées à l'aide de plusieurs réseaux de pore assez simples afin d'identifier des tailles de pores.

Ce travail de thèse est présenté sous forme d'une thèse par publications. Elle contient 4 chapitres, soit 2 premiers chapitres écrits en français pour la partie bibliographique et la partie expérimentale et 2 chapitres sous forme d'articles écrits en anglais présentés dans les chapitres 3 et 4.

Le chapitre 1 est un chapitre bibliographique. Afin de bien définir les paramètres structuraux du bois, ce chapitre commence par une présentation synthétique de l'anatomie du bois, base de compréhension de la perméation du gaz. Ensuite, on présente la loi de Darcy, les différents modèles de glissement moléculaire, puis les modèles utilisés pour le bois dans la littérature. Il apparait ainsi qu'à partir de mesures de la perméabilité gazeuse du bois en faisant varier les régimes d'écoulement du fluide on peut en tirer des informations assez précises sur les paramètres structuraux du bois.

Le chapitre 2 détaille le travail expérimental de la thèse. Afin de caractériser la perméabilité du bois un dispositif original a été conçu. Ce dispositif permet de mesurer une large gamme de perméabilité du gaz varie entre 10^{-10} à 10^{-18} m² à différentes pression moyennes allant de 30 à 1000 mbar. Ce

dispositif a pour originalité de déterminer des valeurs de perméabilité sans débitmètre. Le débit est en effet déduit de l'évolution de la pression dans des réservoirs de volume connu. Cela impose des précautions expérimentales (le dispositif entier est placé dans une enceinte régulée en température) et une analyse rigoureuse des données collectées :

- Pour les échantillons de faible perméabilité de 10^{-14} à 10^{-18} m² le régime isotherme permet de calculer la perméabilité avec une formule simple.
- Pour les échantillons de perméabilité élevée (typiquement > 10^{-13} m²), le régime n'est plus en isotherme et la perméabilité est déterminée par méthode inverse grâce à une modélisation numérique du dispositif.

Les résultats obtenus montrent une bonne fiabilité et une bonne qualité de mesures. A titre d'exemple, nous avons ensuite utilisé les modèles du bois de Petty pour identifier les paramètres structuraux pour les échantillons mesurés.

Les chapitres 3 et 4 reproduisent 2 articles écrits en anglais pendant la thèse. Une description brève de ces articles est décrite ci-après :

Chapitre 3: Ai, W., Duval, H., Pierre, F., Perré, P. (2016) An original device to measure gaseous permeability over a wide range of pressure: characterisation of slip flow for various wood species and wood-based materials (Cet article a été soumis pour publication dans la revue Holzforschung. La version révisée est en cours d'évaluation). Ce chapitre présente le dispositif original de mesure de perméabilité au gaz pour le bois et les matériaux poreux. La perméabilité intrinsèque, le facteur de glissement moléculaire et la taille de pore effectif sont déterminés à partir de variations de perméabilité apparente en fonction de la pression moyenne. Il apparaît que les tailles de pores effectifs identifiés par nos mesures sont étroitement liées à la morphologie des échantillons étudiés.

Chapitre 4: Ai, W., Duval, H., Pierre, F., Perré, P. (2016) Rarefied gas flows in softwood tracheid network: identification of morphological parameters from gas permeability measurements (Nous envisageons de soumettre ce travail à Microfluidics and Nanofluidics ou à Transport in Porous Media). Ce chapitre présente une nouvelle approche pour identifier les paramètres morphologiques du bois à partir des mesures de perméabilité apparentes par le dispositif conçu dans le chapitre 2. Les échantillons sont considérés comme un réseau poral constitué par les éléments fondamentaux comme les cylindres et les orifices interconnectés disposés en série ou en parallèle. L'écoulement des fluides dans chaque élément est simulé par un modèle approprié. Les tailles et distributions des pores sont ensuite déterminés par minimisation des écarts entre les variations de perméabilité apparente expérimentale et celles simulées par les modèles. L'approche est d'abord validée sur des membranes ayant une taille de pores unique et contrôlée par observation au microscope électronique. Un bon accord est trouvé et il valide cette approche pour identifier les paramètres morphologiques du bois.

Les autres résultats pendant la thèse ont également été présentés dans les conférences suivantes :

- W. Ai, H. Duval, F. Pierre, P. Perré (2013) Identification de paramètres structuraux du bois à partir de mesures de perméabilité apparente en phase gazeuse raréfiée. 2ème Journées scientifiques du GDR 3544 « Sciences du bois », Champs sur Marne.

- W. Ai, H. Duval, F. Pierre, P. Perré (2015) Rarefied gas flows in softwood tracheid network : identification of morphological parameters from gas permeability measurements. 2nd European Conference on Non Equilibrium Gas Flows – NEGF15.

L’ensemble du travail a été effectué par l’auteur de thèse dans l'unité de recherche LGPM (Laboratoire Génie des Procédés et Matériaux) financé par la bourse doctorale de CentraleSupélec. L'étudiant a également rédigé les premières versions des articles, qui ont ensuite été repris et corrigés par les encadrants et le directeur de thèse.

I. Revue de littérature

1. Introduction

Ce premier chapitre est une revue bibliographique du sujet traité dans le cadre de ce travail de doctorat. Il a pour but de fournir les éléments nécessaires à la bonne compréhension du sujet et de montrer les limites des études déjà effectuées dans le domaine justifiant ainsi le présent travail.

Après une première partie consacrée au matériau bois où son anatomie et quelques propriétés physiques y sont décrites succinctement, nous nous intéressons aux phénomènes de transfert de gaz dans le matériau. Pour cela les aspects théoriques des phénomènes de perméabilité au gaz sont présentés dans un premier temps avant de détailler les dispositifs et techniques existant pour la déterminer expérimentalement. Les paramètres pouvant influencer la perméabilité tels que la variabilité et l'anisotropie du bois ou encore sa teneur en eau sont détaillés. Il ressort notamment de cette étude bibliographique qu'il est possible de tirer des informations sur les paramètres structuraux du bois à partir des mesures de perméabilité gazeuse du bois en faisant varier les régimes d'écoulement du fluide.

2. Anatomie du bois

2.1. Fonctions et formation du bois dans l'arbre

Le bois (Figure I- 1) est un ensemble de tissus d'origine secondaire à parois lignifiées résultant du fonctionnement vers l'intérieur de l'assise cambiale libéro-ligneuse (Keller 1991, Perré 2015). Il remplit différentes fonctions :

- Fonction de conduction ascendante de la sève brute depuis les racines jusqu'à la cime de l'arbre. Cette fonction est assurée par les vaisseaux longitudinaux chez les feuillus et par les trachéides longitudinales chez les résineux.
- Fonction de soutien mécanique, assurée principalement par les trachéides chez les résineux et les fibres et fibres trachéides chez les feuillus.
- Adaptation de la forme à l'environnement de l'arbre, assurée par le bois de réaction (bois de compression chez les résineux et bois de tension chez les feuillus).
- Fonction de stockage assurée par les cellules de parenchyme.
- Fonction de résistance aux agressions biologiques.

Ces tissus sont constitués de cellules issues des divisions de l'assise cambiale libéro-ligneuse qui forme l'aubier vers l'intérieur de l'arbre, tissu constitué de cellules fonctionnelles dans lesquelles circule la sève brute. La plupart des cellules ne vivent que quelques semaines et meurent lors de leur lignification (formation de la paroi secondaire). Après quelques années de fonctionnement, les cellules de parenchyme qui étaient restées vivantes meurent et l'aubier se transforme pour former le duramen (ou bois de cœur) c'est le processus de duraminisation. C'est lors de ce processus que se forme la plupart des métabolites secondaires, qui ont un rôle primordial dans la durabilité de bois de cœur. Le duramen, qui pour certaines essences peut présenter une couleur plus foncée, assure une fonction de soutien et constitue la masse principale de la tige des arbres âgés. Associés à la moelle présente au cœur de l'arbre, l'aubier et le duramen constitue le bois. Bien entendu, le duramen n'existe pas encore sur les jeunes tiges.

Notons également la présence de l'écorce en périphérie de l'arbre qui assure la circulation de la sève élaborée et jour un rôle de protection. Elle est composée du liber, issus des divisions de l'assise

cambiale libéro-ligneuse vers l'extérieur ainsi que du suber (ou liège) et du phelloderme issu des divisions de l'assise cambiale subéro-phéllodermique.

Dans les régions tempérées, l'assise cambiale libéro-ligneuse cesse de fonctionner en hiver et reprend son activité lors de la reprise de l'activité de végétation en mettant en place une nouvelle couche de cellules distincte de la couche précédente. Ces couches successives sont des « cernes d'accroissement annuels ». Les saisons influencent l'activité cambiale et il est souvent possible de distinguer le bois de printemps (bois initial) du bois d'été (bois final) (Figure I- 1). La distinction est très facile chez les conifères car le bois d'été, constitué de trachéides à faible extension radiale et à parois épaisses, a une couleur brune alors que le bois de printemps est plutôt jaune. La largeur de cerne n'est pas constante dans un même arbre, elle varie en fonction des conditions de croissance d'une année sur l'autre, de la nature des sols, du statut social de l'arbre…

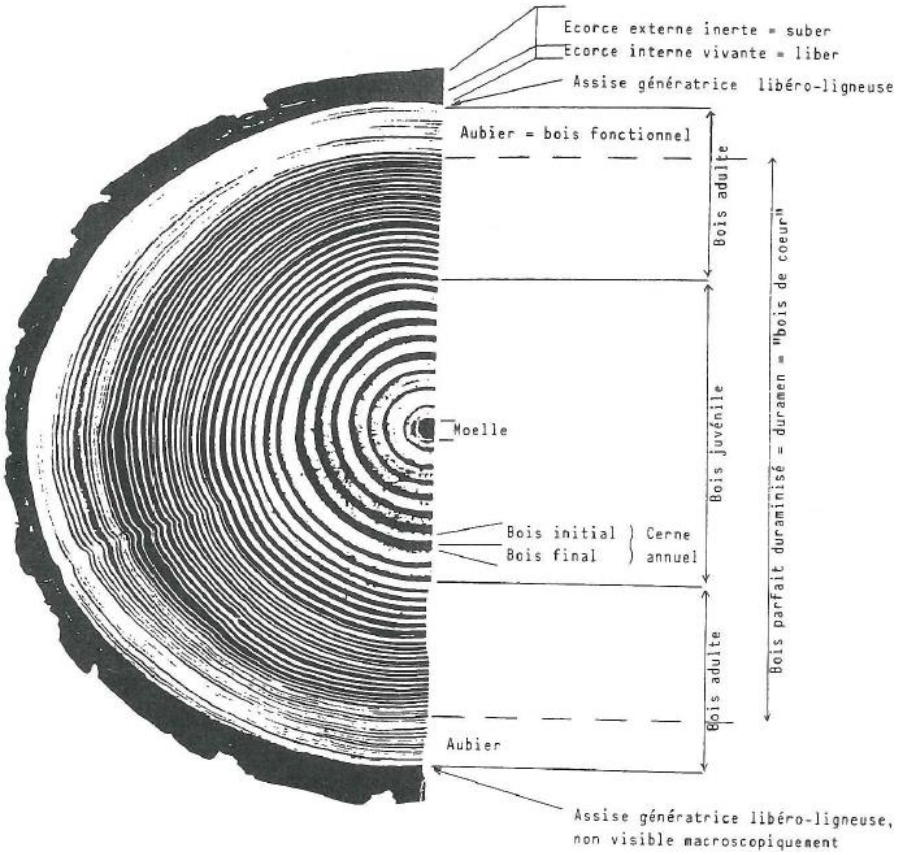

Figure I- 1. Les différentes parties du tronc d'un arbre : la moelle, le bois de cœur, l'aubier et l'écorce (cambium, écorce externe et écorce interne) avec ses tissus principaux (D'après Grosser 1977).

2.2. Le plan ligneux

Les caractéristiques morphologiques des cellules du bois et leurs dispositions constituent le plan ligneux. Il nous permet d'étudier le bois selon trois directions orthogonales :

- La direction longitudinale (L) parallèle au sens des fibres.
- La direction radiale (R) perpendiculaire à la tige et passant par la moelle.
- La direction tangentielle (T) tangente aux cernes d'accroissement annuels.

Ces trois directions expliquent l'anisotropie du bois et constituent les trois plans perpendiculaires de référence du bois (Figure I- 2) :

- Le plan transversal (plan Tr) : perpendiculaire à la tige de l'arbre.

- Le plan radial (plan Ra) : parallèle à la tige de l'arbre et passant par son centre.
- Le plan tangentiel (plan Tg) : parallèle à la tige de l'arbre et tangent aux cernes annuels.

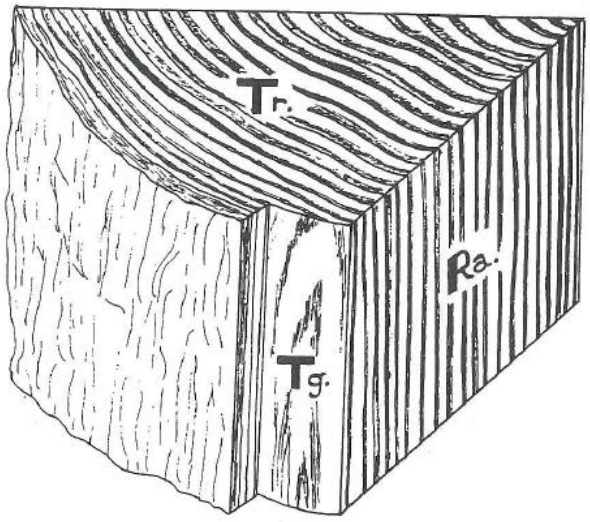

Figure I- 2. Les trois plans de référence du tronc d'arbre : le plan transversal (Tr), le plan radial (Ra) et le plan tangentiel (Tg) (Keller 1991).

Le plan ligneux est héréditaire, constant pour tous les arbres d'une même espèce et indépendant de l'environnement. Il permet d'identifier et de décrire les essences de bois et de connaître leur structure.

2.3. Eléments anatomiques

2.3.1. Chez les conifères (gymnospermes, d'après Keller 1991)

Les conifères (Figure I- 3) sont apparus il y a 270 millions d'années, donc bien avant les feuillus apparus il y a environ 10 millions d'années. Ils possèdent une structure moins évoluée donc plus simple que les feuillus. En général, les conifères sont composés de deux principaux types de cellules : les trachéides (environ 90% du volume total du bois) et les cellules de parenchyme.

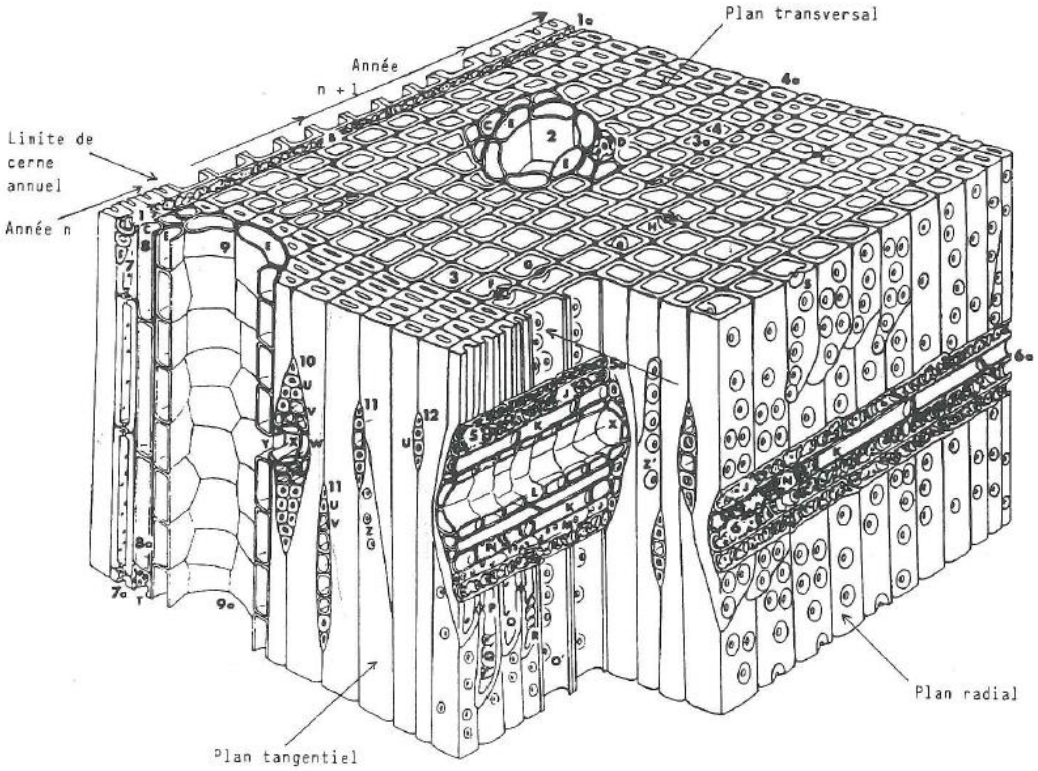

Figure I- 3. Schéma d'un bloc de bois de pin.

Plan tranversal : 1-1a rayons (coupe) ; B trachéide transversale ; 2 canal résinifère ; C parenchyme longitudinal à paroi mince ; E cellule épithéliale ; 3-3a trachéides de bois de printemps ; F ponctuation aréolée radiale coupée au niveau du torus ; G ponctuation aréolée coupée en-dessous de l'ouverture de la ponctuation ; H ponctuation aréolée tangentielle ; 4-4a trachéides de bois final

Plan radial : 5-5a rayons ligneux hétérogène (coupe) ; J trachéide transversale ; K parenchyme à paroi mince ; L cellule épithéliale ; M trachéide transversale non coupée ; N parenchyme à paroi épaisse ; O ponctuation aréolée radiale de trachéide de bois final ; O' ponctuation aréolée radiale de bois initial ; P ponctuation aréolée tangentielle ; Q épaississement callitroïdes ; R épaississement spiralé ; S ponctuation aréolée radiale ; 6-6a rayon ligneux hétérogène (coupe)

Plan tangentiel : 7-7a trachéide cloisonnée mixte ; 8-8a parenchyme longitudinal à paroi mince ; T parenchyme à paroi épaisse ; 9-9a canal résinifère longitudinal ; 10 rayon ligneux hétérogène ; U trachéide radiale ; V parenchyme de rayon ligneux ; W cellules épithéliales horizontales ; X canal résinifères horizontal ; Y anastomose entre canaux résinifères radial et longitudinal ; 11 rayon unisérié hétérogène ; 12 rayon unisérié homogène ; Z petite ponctuation aréolée tangentielle de bois final ; Z' grosse ponctuation aréolée de bois final (D'après Howard et Manwiller 1969 repris dans Siau 1984).

- Les trachéides longitudinales (Figure I- 3): les trachéides sont des cellules fusiformes de section souvent rectangulaire (dimensions entre 25 µm et 75 µm). Elles sont allongées longitudinalement avec une longueur allant de 1 à 8 mm et sont effilés aux extrémités. Elles servent à la fois aux fonctions de soutien mécanique et de conduction de la sève. Sur les extrémités et les faces radiales des trachéides se trouvent des ponctuations aréolées permettant les échanges de cellule à cellule. Elles existent également sur les faces tangentielles mais sont moins abondantes. Notons qu'il existe également des ponctuations dites à champ de croisement entre les trachéides et les cellules de parenchyme des rayons ligneux.

- Les rayons ligneux (Figure I- 3): les rayons ligneux sont les cellules de parenchyme radiales sur le plan transversal. Ils sont issus de la division des îlots de cellules initiales des rayons du cambium.

Ils sont composés de parenchymes radiaux ou de trachéides radiales. Ils ont un rôle de conduction et de stockage de réserves.

- Le parenchyme radial : le parenchyme radial est la cellule sécrétrice transversale. Il est métaboliquement actif et peut se former à la suite d'une blessure. Il a un rôle de stockage des réserves ou des déchets, de restitution des réserves, l'élaboration de substances. La largeur du parenchyme est de même ordre d'une trachéide. Sa hauteur peut varier d'une cellule à plusieurs dizaines.

- Les trachéides radiales : les trachéides radiales sont des trachéides disposées dans le plan transversal. Ces trachéides sont lignifiées juste après leur formation et sont donc mortes dans le bois. Elles portent des ponctuations aréolées sur leurs parois cellulaires. Elles accompagnent les parenchymes radiaux et leur forme peut être irrégulière.

- Les canaux résinifères radiaux : les canaux résinifères radiaux sont issus des initiales des rayons. Ils sont toujours inclus à l'intérieur d'un rayon ligneux qui s'élargit pour englober ces formations sécrétrices.

- Le parenchyme longitudinal : le parenchyme longitudinal est issu des initiales fusiformes et se présente sous forme de files de cellules cloisonnées. Il a un rôle de stockage et peut conférer au bois une odeur caractéristique.

- Les canaux résinifères longitudinaux : les canaux résinifères longitudinaux sont issus des initiales fusiformes et ils sont des cavités tubulaires ayant un rôle sécréteur.

2.3.2. Chez les feuillus (angiospermes dicotylédones, d'après Keller 1991)

Les feuillus (Figure I- 4) ont une structure plus évoluée et complexe que les résineux. A la différence des résineux, les rôles de conduction de la sève et de soutien mécanique sont assurés séparément, respectivement par les vaisseaux et les fibres. Comme chez les résineux, les cellules de parenchyme assurent la fonction de réserve de substances nutritives. En général, les feuillus sont notamment composés de vaisseaux, de trachéides, de fibres et de cellules de parenchyme.

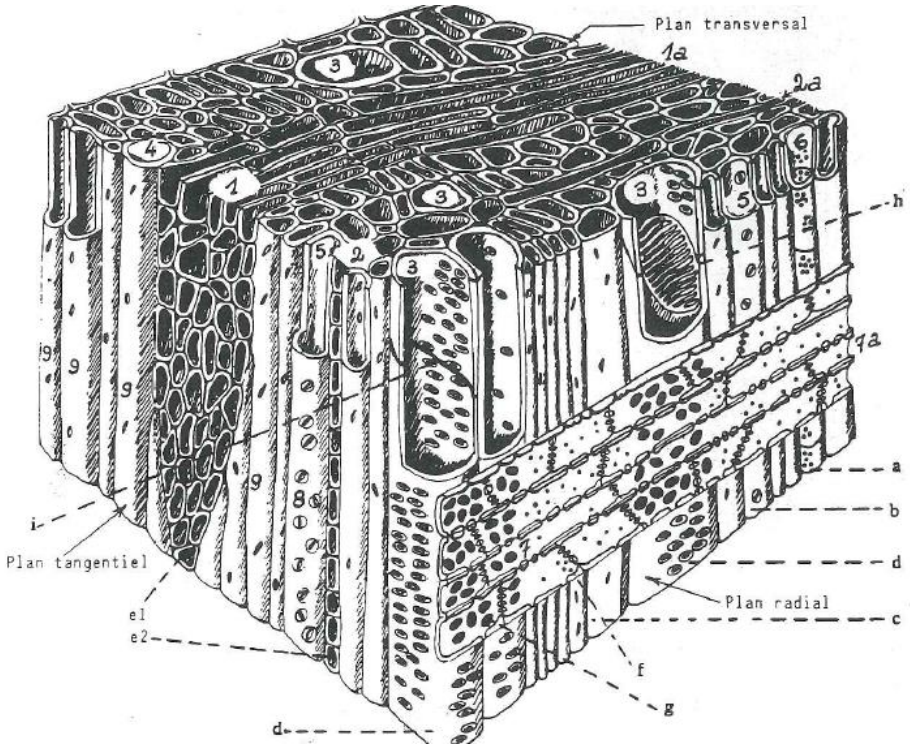

Figure I- 4. Schéma d'un bloc de bois de hêtre

Plan transversal : 1-1a rayons ligneux multisérié (coupe) ; 2-2a rayon ligneux unisérié (coupe) ; 3 vaisseau ; 4 fibre simpliciponctuée (libriforme) ; 5 fibre-trachéide ; 6 parenchyme longitudinal.

Plan radial : 7-7a rayon ligneux unisérié (coupe) ; a parenchyme longitudinal ; b fibre-trachéide ; c fibre simpliciponctuée ; d vaisseau avec ponctuations latérales aréolées intervasculaires ; f ponctuations simples entre parenchyme de rayon ligneux et fibre simpliciponctuée ; g ponctuations simples de champ de croisement entre parenchyme de rayon ligneux et élément de vaisseau ; h perforations en grille (scalariforme) ; i perforation unique.

Plan tangentiel : e1 rayon ligneux multisérié ; e2 rayon ligneux unisérié ; 8 fibre-trachéide ; 9 fibre simpliciponctuée (D'après Jacquiot et al. 1973).

- Les vaisseaux des feuillus sont des cellules allongées ayant un rôle de conduction de la sève brute. La longueur des éléments de vaisseau peut varier de 150 à 1900 µm et le diamètre peut varier de 50 à 500 µm. Les éléments de vaisseau sont caractérisés par deux ouvertures situées à leurs extrémités, appelée les perforations. La perforation peut être du type scalariforme (la cloison sous forme de barres qui dessinent une sorte d'échelle) ou de type simple (la cloison est sous forme d'un bourrelet périphérique). La communication entre deux rangées d'éléments de vaisseaux se fait grâce aux ponctuations aréolées.

- Les rayons ligneux des feuillus sont plus variés que ceux des résineux en termes de dispositions et de dimensions. Les cellules sont plutôt allongées dans la direction radiale et leurs sections sont carrées ou allongées. La hauteur des rayons peut atteindre plusieurs centimètres et leur largeur une cinquantaine de cellules.

- Les fibres sont des cellules allongées, aux parois généralement épaisses et portent peu de ponctuations simples. Elles sont issues des cellules initiales fusiformes et constituent environ 50 à 60% de la masse du bois. Elles sont lignifiées et jouent un rôle de soutien mécanique. La longueur de la fibre dépasse rarement 2,5 mm et son diamètre varie de 20 à 40 µm.

- Les trachéides de feuillus sont présentes chez certaines espèces. Elles sont plus irrégulières que chez les résineux.

- Le parenchyme longitudinal est constitué de cellules plus larges et à parois moins épaisses que les fibres. Il a une fonction d'accumulation, de restitution et de transformation des réserves et il joue un rôle essentiel durant la duraminisation qui fait passer le bois de son rôle fonctionnel (aubier) à son état inerte de bois de coeur (duramen). Il existe deux types de parenchymes en fonction de leurs dispositions : le parenchyme apotrachéal et le parenchyme paratrachéal.

- le parenchyme apotrachéal est le parenchyme longitudinal se dispose de façon indépendante des vaisseaux. Il peut se diffuse en chaînettes, en lignes ou en bandes tangentielles parmi les éléments fibreux.

- le parenchyme paratrachéal est le parenchyme longitudinal associé aux vaisseaux qu'il entoure partiellement ou complètement avec des prolongements tangentiels aliforme (il forme des prolongements comme les ailes de part et d'autre du vaisseau) ou confluent (les parenchymes aliformes entourent les vaisseaux se rejoignent d'un vaisseau à l'autre).

2.4. La paroi cellulaire

Les cellules ligneuses présentent une paroi cellulaire qui joue un rôle capital pour de nombreuses propriétés physiques du bois. Elle possède une microstructure très hiérarchisée constituée d'une paroi primaire et d'une paroi secondaire, formée durant la lignification, elle-même composée par trois sous-couches (S1, S2 et S3). Les cellules sont reliées entre elles par une lamelle moyenne (Figure I- 5).

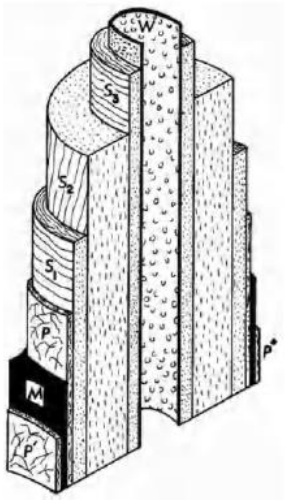

Figure I- 5. Schéma montrant la microstructure hiérarchique des différentes couches de la paroi cellulaire du résineux : P paroi primaire ; M lamelle moyenne ; S1 sous-couche interne ; S2 sous-couche intermédiaire ; S3 sous-couche externe ; W couche verruqueuse ; P et P' : paroi primaire de cellules adjacentes (D'après Ward et al. 1964).

2.4.1. La lamelle moyenne

La lamelle moyenne (appelée aussi la couche intercellulaire) apparaît après la division des noyaux et réunit les cellules les unes aux autres. Elle contient des substances pectiques et se charge de lignine au cours de sa différenciation. Son épaisseur varie de 0,5 à 1,5 µm.

2.4.2. La paroi primaire

La paroi primaire se forme et s'appuie sur la lamelle moyenne à la fin de la division cellulaire. Elle contient de la lignine et est constituée de plusieurs couches de micro-fibrilles de cellulose enchevêtrées formant un réseau lâche. L'épaisseur de la paroi primaire varie en fonction de quantité d'eau qu'elle contient. Dans la plante vivante, elle est de l'ordre de 0,1 µm alors que dans le bois sec elle se réduit jusqu'à 0,03 µm.

2.4.3. La paroi secondaire

Lorsque la cellule atteint sa dimension définitive, elle dépose sur la paroi primaire une nouvelle couche rigide qui constitue la partie de la cellule la plus résistante mécaniquement. C'est l'étape de lignification, qui induit la mort de la cellule. Cette nouvelle couche est appelée paroi secondaire. Elle est très riche en cellulose et contient trois sous-couches S1, S2 et S3 qui se déposent successivement. Chaque sous-couche est constituée de micro-fibrilles de cellulose à l'orientation variable. L'angle des micro-fibrilles agit sur les propriétés physico-mécaniques du bois.

- La sous-couche externe S1 :

Elle se trouve en position la plus externe entre la paroi primaire et la sous-couche S2. Elle a une paroi fine qui varie entre 0,1 et 0,35 µm d'épaisseur représentant de 5 à 10% de l'épaisseur totale de la paroi cellulaire. Les micro-fibrilles de cellulose sont disposées en hélices d'orientations variables et alternées. L'angle des micro-fibrilles par rapport à la direction longitudinale (l'axe de la cellule) varie de 60 à 80°.

- La sous-couche intermédiaire S2 :

Elle se trouve en position entre les sous-couches S1 et S3 et constitue la partie de la paroi la plus volumineuse puisque son épaisseur varie de 1 à 10 µm ce qui représente entre 75 et 85% de l'épaisseur totale de la paroi cellulaire. Les micro-fibrilles y sont disposées parallèlement et présentent un angle faible par rapport à la direction longitudinale (typiquement de 5 à 30°).

- La sous-couche interne S3 :

Elle se trouve en position la plus interne de la paroi cellulaire, donc en contact avec le lumen (vide) de la cellule. Elle a une paroi d'une épaisseur intermédiaire variant de 0,5 à 1,10 µm. Les micro-fibrilles de cellulose sont disposées parallèlement et présentent un angle par rapport à la direction longitudinale de 60 à 90°.

2.5. Les ponctuations et perforations des parois cellulaires

Les ponctuations sont des zones de communication entre les cellules adjacentes. Elles sont ouvertes dans la paroi cellulaire et servent aux mouvements des substances nutritives ou de sève brute de cellule à cellule. Seule la paroi secondaire est interrompue, la lamelle moyenne et la paroi primaire subsistent plus ou moins. Basé sur la forme des ouvertures, il existe deux grands types de ponctuations assurant les échanges intercellulaires : les ponctuations simples et les ponctuations aréolées.

2.5.1. Les ponctuations simples

Les ponctuations simples (Figure I- 6) sont fréquentes dans les cellules de parenchymes et dans les fibres libriformes. Elles possèdent des ouvertures de différentes formes :

- Ouverture cylindrique, la plus fréquente parmi les ponctuations simples.
- Ouverture circulaire avec des diamètres différents sur la face interne et externe de la paroi (parenchyme, fibres libriformes).
- Ouverture elliptique, à axes plus ou moins allongés, dont les axes des deux ouvertures ne sont pas forcément dans le même plan.
- Ouverture en forme de simples fentes dont les orientations sont différentes dans deux cellules adjacentes.

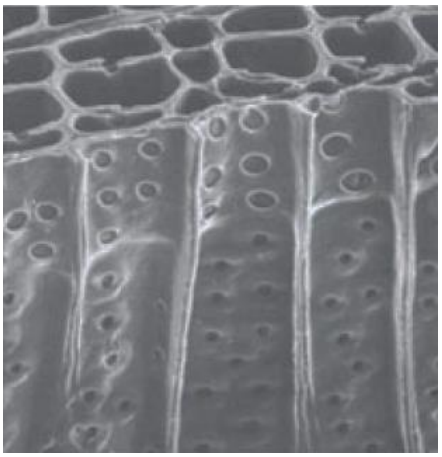

Figure I- 6. Ponctuations simples du type cylindrique sur les parois latérales du bois du printemps d'un résineux. (Labbé 2002).

2.5.2. Les ponctuations aréolées

Les ponctuations aréolées (Figure I- 7, Figure I- 8) sont fréquentes dans les trachéides et les éléments de vaisseaux. Elles possèdent souvent des ouvertures circulaires assez grandes et sont caractérisées par un décollement de la paroi secondaire par rapport à la paroi primaire résultant du bombement local de la paroi secondaire vers l'intérieur de la cellule. Un espace se trouve entre le bombement et la paroi primaire constitue la chambre de la ponctuation. Chez les deux types de bois, les ponctuations aréolées présentent des légères variétés.

- Les ponctuations aréolées des résineux :

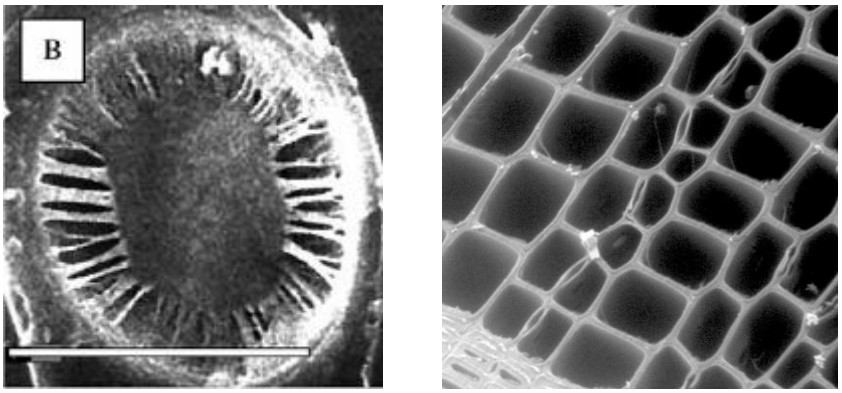

Figure I- 7. Ponctuation aréolée : ponctuation aréolée non aspirée (à gauche) (Domec et al. 2006), ponctuation aréolée dans le plan transversale (à droite, cliché ESEM, P. Perré).

Chez les résineux les ponctuations aréolées sont souvent en forme circulaires. Elles présentent un torus au milieu de la chambre de la ponctuation résultant de l'épaississement de la paroi primaire. Il fonctionne comme une valve durant le transit des substances nutritives : quand le gaz envahit une trachéide le torus peut se plaquer contre l'une ou l'autre des bords de l'aréole, ce mouvement étant rendu possible par l'élasticité de la membrane obturant (Siau 1984). Ensuite la fermeture de la ponctuation est assurée par les liaisons hydrogènes qui rendent la ponctuation imperméable. Ce type de ponctuation obturée est appelé la ponctuation aspirée. L'aspiration de la ponctuation est vitale pour l'arbre (les ponctuations aspirées peuvent isoler les trachéides en cas d'embolie ou de cavitation). Les ponctuations sont souvent aspirées dans le duramen, notamment dans la partie bois initial.

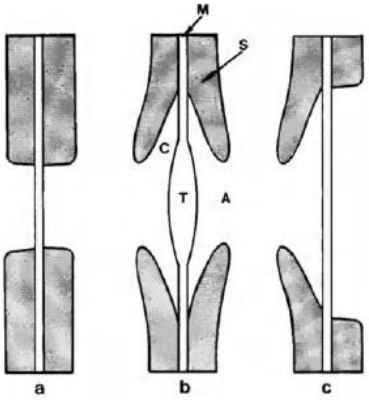

Figure I- 8. Différents types de ponctuations : a ponctuation simple ; b ponctuation aréolée ; c ponctuation semi-aréolée. A ouverture ; C chambre ; T torus ; M lamelle mitoyenne ; S paroi secondaire (Siau 1984).

- Les ponctuations aréolées des feuillus

Les ponctuations aréolées sont similaires chez les feuillus où on les retrouve sur les parois des trachéides longitudinales ou des fibres-trachéides. Elles sont également présentes sur les parois des éléments de vaisseaux. Elles ne présentent alors pas de torus et ont des formes différentes : elliptique, allongée, scalariforme, polygonale...

- Les ponctuations semi-aréolées :

Les ponctuations semi-aréolées (Figure I- 8) apparaissent entre les cellules de fonctions différentes. Elles sont de type simple du côté du parenchyme et de type aréolé du côté de la trachéide pour les résineux et du vaisseau pour les feuillus.

- Les perforations :

Les perforations (Figure I- 9) sont des ouvertures qui se trouvent sur les extrémités des vaisseaux. Elles peuvent être totales et avoir le même diamètre que la lumière du vaisseau. Elles peuvent être aussi partielles sous forme de grille ou réseau.

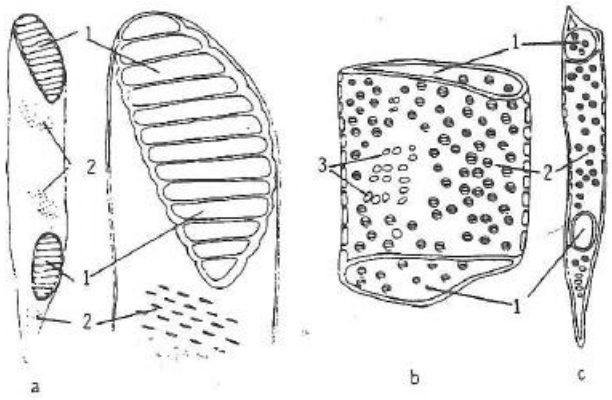

Figure I- 9. Schéma des éléments de vaisseaux de différentes essences du bois : a bouleau ; b chêne (élément de bois de printemps); c chêne (élément de bois d'été) ; 1 perforations ; 2 ponctuations latérales ; 3 ponctuations de champ de croisement (Bosshard 1974).

2.6. Masse volumique et infra-densité

La masse volumique e un paramètre explicatif de plusieurs propriétés physique et mécanique du bois. Par exemple la dureté, la rigidité et le retrait ont tendance à augmenter avec la masse volumique. La masse volumique varie selon les différentes essences du bois des porosités différentes et elle peut être très différente au sein d'une même essence. En revanche, la masse volumique de la matière ligneuse ne dépend pas des essences : la valeur communément admise est de 1,530 kg/m^3 (Stamm et Hansen 1937).

La masse volumique est définie comme le rapport de la masse du bois par rapport à son volume pour une humidité donnée :

$$\rho_H = \frac{M_H}{V} \qquad \textit{Equation I- 1}$$

avec ρ_H : masse volumique du bois à certaine humidité H (unité : kg/m^3)

M_H : masse du bois à certaine humidité H (unité : kg)

V : volume du bois à certaine humidité H (unité : m^3), il est déterminé selon le principe d'Archimède.

H: humidité du bois, elle est définie comme le rapport de la masse de l'eau dans le bois par rapport à la masse anhydre :

$$H = \frac{M_{eau}}{M_a}$$ *Equation I- 2*

avec M_{eau} : masse de l'eau dans le bois (unité : kg)

M_a : masse anhydre du bois (unité : kg)

Dans le cas du bois, cette grandeur simple, rapport de masse sur volume est relativement difficile à quantifier car la masse et le volume (via le retrait) dépendent de la quantité d'eau contenue dans le bois. Afin d'obtenir une grandeur objective, l'infra-densité est généralement utilisée en sciences du bois. Elle est définie comme le rapport entre la masse anhydre du bois et son volume saturé en eau (il s'agit donc d'une valeur virtuelle qui ne correspond à aucun des états que le bois peut atteindre) :

$$\rho_i = \frac{M_a}{V_s}$$ *Equation I- 3*

avec ρ_i : infra-densité du bois (unité : kg/m^3)

V_s : volume du bois saturé (unité : m^3), donc mesuré à une humidité supérieure à celle correspondant au point de saturation des fibres

3. Perméabilité

La perméabilité quantifie l'aptitude d'un milieu poreux au passage d'un fluide en réponse à un gradient de pression. Dans le cas du bois, cette grandeur physique intervient dans plusieurs situations pratiques : imprégnation pour la préservation, séchage, reprise d'humidité, étanchéité des tonneaux... Pour cette raison, les travaux sur la perméabilité sont d'une importance capitale pour les applications de l'usage du bois. La tâche n'est pas simple car, du point de vue de la perméabilité, le bois est fortement anisotrope, hétérogène (par exemple entre duramen et aubier) et présente une très grande variabilité.

3.1. La loi de Darcy

L'aptitude d'un matériau poreux à laisser passer un liquide ou un gaz en réponse à un gradient de pression est quantifiée par la loi de Darcy (1856). La perméabilité est le coefficient phénoménologique qui apparaît dans cette loi :

$$Q = -A\frac{K}{\mu}\frac{\Delta P}{L}$$ *Equation I- 4*

avec Q : débit volumique du fluide (unité : m^3/s)

K : perméabilité intrinsèque du matériau (unité : m^2), qui ne dépend que de la morphologie du matériau poreux.

A : surface de l'échantillon (unité : m^2)

μ : viscosité dynamique du fluide (unité : $Pa.s$)

ΔP : différence de la pression d'un côté et d'autre de l'échantillon (unité : Pa)

L : épaisseur de l'échantillon (unité : m)

Le signe négatif indique le sens de l'écoulement à l'opposé au gradient de pression : tendance du milieu à tendre vers l'équilibre.

Remarque : Il existe certaines limitations quand on utilise l'Equation I- 4. La loi de Darcy implique certaines hypothèses :

1) Le fluide est newtonien et l'écoulement est laminaire. Ainsi le débit volumique et la vitesse sont directement proportionnels au gradient de pression.
2) Le fluide est incompressible et homogène
3) Le milieu poreux est homogène qui implique que la perméabilité est indépendante de la longueur de l'échantillon dans la direction de l'écoulement.
4) Il n'y a pas d'interaction entre le fluide et le substrat.
5) La vitesse est nulle à la paroi du solide.

En dépit de la violation fréquente de ces hypothèses, on utilise la loi de Darcy pour calculer la perméabilité du bois au gaz ou liquide : dans ce cas, on parlera de perméabilité apparente plutôt que de perméabilité intrinsèque.

L'application de la loi de Darcy au bois mérite quelques commentaires :

Les ouvertures (ponctuations/perforations) entre lumens cellulaires impliquent des grands ratios de section le long de l'écoulement. Bien qu'il soit improbable que l'écoulement soit turbulent en raison des vitesses limitées en écoulement de Darcy, des recirculations et des pertes de linéarité entre gradient de pression et flux ne sont pas exclus (hypothèse 1). Siau et Petty (1979) montrent que l'écoulement non-linéaire dans le bois peut se produire lorsqu'on mesure l'écoulement du fluide (liquide ou gaz) dans les capillaires courts en rentrant dans les ponctuations pour le nombre de Reynolds entre 1 et 16 sur l'épicéa de Sitka.

Pour des milieux peu perméables, par exemple en direction transverse du bois, les gradients de pression intégrés sur la longueur de l'écoulement peuvent facilement produire des changements de pression importants (hypothèse d'écoulement incompressible). En cas de migration gazeuse, il n'est donc pas toujours possible de faire l'hypothèse d'un écoulement incompressible. Dans ce cas, il suffira d'utiliser la forme locale de la loi de Darcy plutôt que la forme globale exprimée dans l'Equation I- 4.

Lorsque l'eau se déplace dans le bois, la liaison hydrogène peut-être exercée par des groupes hydroxyle de la paroi cellulaire du bois. Cela explique la faible perméabilité du bois à la solution aqueuse plutôt qu'au liquide non-polaire de même viscosité (Nicholas et Siau 1973). L'hypothèse de la vitesse nulle à la paroi solide sera discutée en détail dans la partie glissement moléculaire. Enfin, la nature intrinsèque de la perméabilité devrait aboutir à une valeur de perméabilité indépendante de la longueur. Ce n'est pas le cas dans le bois. En effet, la probabilité pour l'écoulement de devoir emprunter des ouvertures plus petites augmente avec la longueur de l'échantillon. Cela peut facilement se retrouver à l'aide d'un modèle de percolation (Perré et Karimi 2002).

3.2. Relation avec la porosité

La porosité est le rapport du volume des pores sur le volume total d'un matériau poreux. Elle peut varier de zéro à presque l'unité. Elle est définie par :

$$\varepsilon = \frac{V_{pore}}{V_s}$$ *Equation I- 5*

avec V_{pore} : volume des pores dans l'échantillon du bois (unité : m^3)

ε : porosité du bois (grandeur adimensionnelle), elle peut être exprimé par :

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_a}{\rho_m}$$ *Equation I- 6*

avec ρ_m : masse volumique de la matière ligneux du bois, égale à 1530 kg/m^3

ρ_a : masse volumique du bois anhydre (unité : kg/m^3)

Il n'existe pas de relation directe entre la perméabilité et la porosité. Par nature, un milieu poreux est poreux, mais un milieu poreux n'est pas forcément perméable, la perméabilité n'étant due qu'à la porosité connectée. Il existe en effet deux types de porosité : la porosité interconnectée (ou les pores effectifs) et la porosité isolée (ou porosité occluse) (Figure I- 10) :

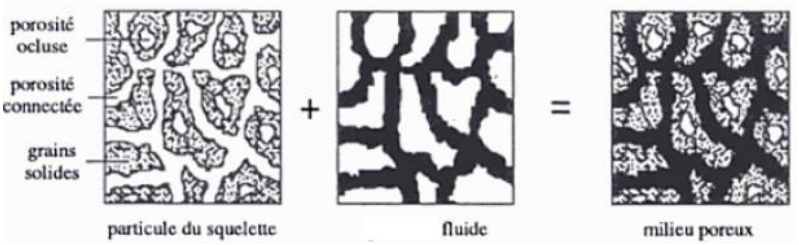

Figure I- 10. Les pores interconnectés et isolés et les fluides dans le milieu poreux (Coussy1991)

Pour le bois, les pores interconnectés sont les trachéides ou vaisseaux avec les ponctuations ouvertes (ou les ponctuations non aspirées). Les pores isolés sont les trachéides ou vaisseaux avec des ponctuations aspirées, colmatées ou bloquées par des thylles. Afin de relier la perméabilité aux ponctuations ouvertes dans le bois, on définit la porosité active :

$$\varepsilon_a = \frac{V_a}{V_s}$$ *Equation I- 7*

avec ε_a : porosité active du bois (unité adimensionnelle)

V_a : volume des pores actifs au transport des particules fluides (unité : m^3)

3.2.1. Méthodes expérimentales de mesure de la porosité

Il existe plusieurs méthodes expérimentales pour la détermination de la porosité. Nous présentons ci-après les principales méthodes utilisées pour le bois.

- Méthode du pycnomètre à gaz : elle permet de déterminer le volume d'un échantillon solide de masse connue (Edward 1970). Le principe consiste à injecter un gaz à une pression donnée dans une enceinte de référence, puis à détendre ce gaz dans l'enceinte de mesure contenant l'échantillon poreux en mesurant la nouvelle pression du gaz dans cette enceinte. Le volume de l'échantillon pourra être déterminé par la loi de Mariotte :

$$P_{référence}V_{référence} = P_{mesure}(V_{mesure} + V_{référence} - V_{échantillon})$$ *Equation I- 8*

avec $V_{référence}$: volume de l'enceinte de référence

V_{mesure} : volume de l'enceinte de mesure

$V_{échantillon}$: volume de l'échantillon

$P_{référence}$: pression du gaz dans l'enceinte de référence

P_{mesure} : pression du gaz dans l'enceinte de mesure

Cette méthode permet la détermination des pores interconnectés. Pour avoir une bonne précision de mesure, une étape préalable de séchage est nécessaire avant la mesure. Le gaz utilisé pour cette méthode est de l'hélium pour son faible diamètre atomique qui lui permet de pénétrer dans les petits pores.

- Méthode d'analyse d'images : cette méthode consiste à quantifier le taux volumique d'un constituant dans un échantillon. Elle est utilisée dans le milieu des matériaux pour caractériser morphologiquement et quantitativement la porosité (Redon et al. 1997). L'acquisition des images dépend de la nature du matériau analysé ainsi que l'échelle de travail souhaitée. Les équipements les plus utilisés sont le microscope optique et le microscope électronique à balayage (MEB). Une fois la micrographie est acquise, il est possible de traiter cette image afin d'en extraire les informations intéressantes (localisation, morphologie) sur la porosité.

  Notant que la qualité de l'analyse d'images dépend de la qualité de préparation de l'échantillon ainsi que l'acquisition et le traitement d'image (Coster et Chermant 1989). Elle se limite à des échantillons avec des dimensions relativement petites, ce qui nécessite une réflexion sur l'échantillonnage. Le contraste en phase solide et phase gazeuse doit aussi être suffisant pour que le seuillage permette une segmentation correcte.

- Méthode de micro-tomographie aux rayons X : elle est une méthode d'imagerie non destructive qui fournit une image volumique de la répartition du coefficient d'adsorption linéaire des rayons X. Lorsque l'échantillon considéré est un matériau hétérogène dont les constituants absorbent différemment les rayons X, il est possible d'extraire par segmentation une image 3D de la microstructure de ce matériau. Nombreux auteurs ont décrit la cartographie 3D des porosités présentes dans le bois à l'aide de la micro-tomographie (Mayo et al. 2009, Hass et al. 2010, Lautner et Beckmann 2012, Gilani et al. 2014).

Notant que cette méthode reste actuellement relativement couteuse et est limitée par le grand nombre de données générées par échantillon. La résolution spatiale doit aussi être de grande qualité (plutôt nano-tomographie que micro-tomographie).

- Méthode de la porosimétrie au mercure : elle permet de mesurer la distribution de taille des pores d'un échantillon poreux (par exemple pour le sol ou le roche). Le principe consiste à injecter sous pression le mercure, un liquide non mouillant pour la plupart des solides, dans les pores de l'échantillon sous vide. La méthode ne mesure donc que la porosité connectée. Le mercure pénètre dans des pores de diamètre d'entrée d'autant plus petits que la pression

exercée est élevée. Néanmoins, un temps de stabilisation est nécessaire, il varie en fonction du diamètre des pores ainsi que de la forme et de la complexité du réseau de pores est toujours nécessaire. Stayton et Hart (1965) a proposé une relation entre la pression exercée sur le bois et le rayon de l'interface de mercure-air :

$$P_{mercure} - P_{air} = \frac{6{,}2\ 10^5}{r}\ \mu m\ Pa \qquad \textit{Equation I- 9}$$

avec $P_{mercure}$: pression de mercure exercée sur le bois

P_{air} : pression de l'air dans le bois

r : rayon de ménisque/interface de mercure-air

Stayton et Hart (1965) a mesuré le pin, l'épicéa d'Engelmann et le Cyprès de Lawson avec l'épaisseur d'échantillon moins longue que la longueur de trachéide en exerçant la pression jusqu'à 2 10^7 Pa qui correspond à un rayon de 0,03 µm.

Il faut noter que pour de grandes pressions, les pores de l'échantillon peuvent être détruits et changer de morphologie.

- Méthode de BET (Brunauer, Emmett et Teller) : elle permet d'expliquer l'adsorption physique, puis la condensation, des molécules de gaz sur une surface solide qui sert à la mesure de la surface spécifique et la porosité du matériau poreux. En 1938, Stephan Brunauer, Paul Hugh Emmett et Edward Teller ont publiés le premier article sur la théorie de BET. La théorie de BET se réfère à multicouche adsorption et généralement adopte le gaz non corrosif adsorbant comme l'azote, l'argon, le dioxyde de carbone à détermine la porosité en utilisant le principe volumique statique (Brunauer et al. 1938).

- Méthode d'imbibition : la méthode d'imbibition consiste à imbiber l'échantillon poreux d'un liquide mouillant sous vide suffisamment longtemps pour que tous les pores soient remplis par le liquide mouillant. La masse de l'échantillon est prise avant et après l'imbibition. Connaissant les densités de l'échantillon et du liquide, on en déduit la porosité (Siau 1984):

$$\varepsilon = \frac{\rho}{\rho_{liquide}}\left(\frac{M_{après}}{M_{avant}} - 1\right) \qquad \textit{Equation I- 10}$$

avec ρ : masse volumique de l'échantillon (unité : kg/m^3)

$\rho_{liquide}$: masse volumique du liquide mouillant (unité : kg/m^3)

$M_{après}$: masse de l'échantillon après l'imbibition (unité : kg)

M_{avant} : masse de l'échantillon avant l'imbibition (unité : kg)

3.3. Glissement moléculaire

Lorsque la perméabilité est mesurée en phase gazeuse, le caractère moléculaire de l'écoulement peut avoir des conséquences importantes. En effet, contrairement à ce que l'on peut généralement admettre pour un liquide, la valeur du libre parcours moyen (typiquement 80 nm pour de l'air à pression atmosphérique) est telle que la vitesse ne peut plus être considéré comme nulle à la paroi. On parle alors de glissement moléculaire (slip flow en anglais). Cet effet est quantifié par le nombre de Knudsen Kn, un nombre adimensionnel qui permet de déterminer les différents régimes d'écoulement du fluide : le régime visqueux, le régime d'écoulement avec glissement, le régime de transition et le régime de diffusion moléculaire. Il est défini par le rapport du libre parcours moyen à la dimension caractéristique du milieu poreux :

$$Kn = \frac{\lambda}{L_0} \qquad \textit{Equation I- 11}$$

Où L_0: dimension caractéristique du milieu poreux. Elle est souvent le rayon des plus petits pores sollicités le long de l'écoulement.

λ : libre parcours moyen (unité : m), distance moyenne parcourue par une particule entre deux collisions successives. Il est défini par (Sharipov et Seleznev1998) :

$$\lambda = \frac{\mu}{P_m}\sqrt{\frac{\pi RT}{2M}} \qquad \textit{Equation I- 12}$$

Où μ : viscosité dynamique du gaz (unité : $Pa.s$)

P_m : pression moyenne du gaz (unité : Pa)

R : constante universelle des gaz parfaits (unité : $J.mol^{-1}.K^{-1}$)

T : température (unité : K)

M : masse molaire du gaz (unité : $Kg.mol^{-1}$), (0,029 $Kg.mol^{-1}$ pour l'air).

L'hypothèse du milieu continu n'est plus vrai dès que le nombre de Knudsen augmente : l'effet de raréfaction commence à jouer sur le débit massique. En parcourant les différents ordres de grandeur du nombre de Knudsen, on peut classer les différents régimes d'écoulements :

- Régime visqueux ($Kn < 0{,}01$) : appelé aussi régime de Darcy. Dans ce régime, le glissement à la paroi peut être négligé. Les équations de dynamique de fluide conventionnel sont valables dans ce régime et les conditions aux limites pour la vitesse des particules fluides à la paroi du pore est égale à zéro. Dans ces conditions, l'application de la loi de Darcy permet de déterminer la perméabilité intrinsèque, qui ne dépend que de la morphologie du milieu poreux.

- Régime d'écoulement avec glissement ($0{,}01 < Kn < 0{,}1$) : appelé en anglais « Slip flow ». La vitesse du gaz ne peut plus être considéré comme nulle sur les parois solides du pore. Le fluide peut encore être considéré comme visqueux mais la vitesse et la température ne sont plus continues à l'interface entre le fluide et le solide. L'utilisation de la loi de Darcy ne donnera plus la perméabilité intrinsèque mais une perméabilité apparente.

- Régime de transition ($0{,}1 < Kn < 10$) : dans ce régime le nombre de collisions d'une molécule avec les parois devient comparable au nombre de collision avec une autre molécule. Les équations de dynamique de fluides conventionnelles, même avec des adaptations, commencent à perdre leur validité. Il faut alors recourir à des modèles statistiques, telles que la méthode DSMC (Direct Simulation of Monte Carlo, Bird 1994) pour simuler le comportement du fluide dans ce régime.

- Régime de glissement moléculaire ($Kn > 10$) : dans ce régime, le fluide n'est plus considéré comme continu ni visqueux. Les molécules du gaz sont plus indépendantes et il y a moins de collisions intermoléculaires : les collisions entre les molécules et les parois du pore dominent. L'écoulement peut être considéré comme diffusif (diffusion de Knudsen) ou modélisé à l'aide des méthodes statistiques donnant des solutions de l'équation de Boltzmann.

Sachant que la classification est basée sur les données empiriques, les seuils donnés ci-dessus pour les plages du nombre de Knudsen peuvent bien entendu varier légèrement en fonction de la géométrie étudiée.

3.4. Modèles de glissement moléculaire

3.4.1. Régime visqueux ($Kn < 0,01$)

Dans le régime visqueux, l'équation de Navier-Stokes pour un écoulement du fluide newtonien en coordonnées cylindriques s'écrit :

$$\frac{\partial U_z}{\partial t} + U_r \frac{\partial U_z}{\partial r} + \frac{U_\emptyset}{r}\frac{\partial U_z}{\partial \emptyset} + U_z \frac{\partial U_z}{\partial z} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial P}{\partial z} + \nu\left[\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial U_z}{\partial r}\right) + \frac{1}{r^2}\frac{\partial^{2U_z}}{\partial \emptyset^2} + \frac{\partial^{2U_z}}{\partial z^2}\right] + f_z \qquad \textit{Equation I- 13}$$

Pour trouver la solution de cette équation en régime établi dans le cas d'un pore cylindrique rectiligne, on suppose que :

- $R_e \approx 1$
- $\frac{D}{L} \ll 1$: avec D: diamètre du tube, L : longueur du tube (le flux est complètement développé)
- $f_z = 0$: poids du gaz n'est pas pris en compte

Dans ces conditions, nous pouvons nous placer en régime stable unidirectionnel. L'Equation I- 13 se simplifie fortement. En coordonnées cylindriques, nous obtenons :

$$-\frac{1}{\rho}\frac{\partial P}{\partial z} + \nu\left[\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial U_z}{\partial r}\right)\right] = 0 \qquad \textit{Equation I- 14}$$

Dans le régime visqueux, la vitesse du fluide est nulle à la paroi du pore :

$$U_z(r = R_0) = 0 \qquad \textit{Equation I- 15}$$

avec R_0: rayon du tube (unité: m)

L'intégration de l'Equation I- 14 donne la vitesse U_z:

$$U_z = \frac{1}{4\mu}\frac{dP}{dz}r^2 + A_1 lnr + A_2 \qquad \textit{Equation I- 16}$$

Une vitesse finie sur l'axe de tube impose $A_1 = 0$ et la condition pariétale donne $A_2 = -\frac{1}{4\mu}\frac{dP}{dz}R^2$, soit :

$$U_z(r) = -\frac{R^2}{4\mu}\frac{dP}{dz}[1 - \left(\frac{r}{R}\right)^2] \qquad \textit{Equation I- 17}$$

Le débit volumique dans le tube est obtenu par intégration de cette vitesse sur toute la section :

$$Q = \int_0^{2\pi} d\emptyset \int_0^R U_z(r) r dr \qquad \textit{Equation I- 18}$$

En remplaçant l'Equation I- 17 dans l'Equation I- 18, nous obtenons le débit volumique :

$$Q = -\frac{\pi R^4}{8\mu}\frac{dP}{dz} \qquad \textit{Equation I- 19}$$

Le régime étant établi, le gradient de pression est constant sur la longueur du tube :

$$\frac{dP}{dz} = cste = \frac{P_2 - P_1}{L} = -\frac{\Delta P}{L} \qquad \textit{Equation I- 20}$$

Avec L: longueur du tube cylindrique (unité : m)

P_1: pression en amont du tube cylindrique (unité : Pa)

P_2: pression en aval du tube cylindrique (unité : Pa)

ΔP: difference de la pression entre l'amont et l'aval du tube (unité : Pa)

En rappelant l'expression du débit dans la loi de Darcy:

$$Q = \frac{KS_{section}}{\mu}\frac{\Delta P}{L} \qquad \textit{Equation I- 21}$$

En combinant l'Equation I- 19, l'Equation I- 20 et l'Equation I- 21, la perméabilité devient pour un milieu poreux constitué de tubes cylindriques identiques droits et placés en parallèle :

$$K = \frac{\varepsilon_a R^2}{8} \qquad \textit{Equation I- 22}$$

On peut voir sur l'équation ci-dessus que la perméabilité intrinsèque calculée dans le régime visqueux ne dépend bien entendu que de la morphologie du milieu, très simple dans ce cas : rayon du pore et porosité.

3.4.2. Régime d'écoulement avec glissement ($0,01 < Kn < 0,1$)

3.4.2.1. Modèle du 1er ordre

Quand le nombre de Knudsen augmente dans des proportions modestes ($Kn < 0{,}1$), les écoulements changent de régime visqueux au régime d'écoulement avec glissement.

Les équations de Navier-Stokes sont encore valables et l'effet de raréfaction est modélisé par une vitesse non nulle à la paroi du pore. Une condition aux limites est originalement proposée par Maxwell (1879) qui est du 1er ordre de la vitesse et de la température :

$$U_t - U_w = \frac{2-\sigma}{\sigma} K_n \left(\frac{\partial U_t}{\partial n}\right)_s + \frac{3}{2\pi}\frac{\gamma-1}{\gamma}\frac{K_n^2 R_e}{E_c}\left(\frac{\partial T}{\partial t}\right)_s \qquad \textit{Equation I- 23}$$

avec t : vecteur d'unité tangentiel

n : vecteur d'unité normal

Re : nombre du Reynolds ($Re = \frac{\rho u h}{\mu}$)

E_c: nombre d'Eckert ($E_c = \frac{u^2}{C_p \Delta T} = (\gamma - 1)\frac{T_0}{\Delta T} {M_a}^2$)

Ma: nombre du Mach ($Ma = \frac{u}{\sqrt{\gamma R T_0}}$)

ρ: densité volumique du fluide

u: vitesse du fluide

h : dimension caractéristique du milieu poreux

μ: viscosité dynamique du fluide (unité : $Pa.s$)

γ: ratio de la chaleur spécifique

σ: coefficient d'accommodation, il est défini par :

$$\sigma = \frac{\tau_i - \tau_r}{\tau_i - \tau_w} \qquad \textit{Equation I- 24}$$

τ_i : moment tangentiel des molécules incidentes à la surface du solide

τ_r : moment tangentiel des molécules réfléchies à la surface du solide

τ_w : moment tangentiel des molécules réémises de la surface du solide

- $\sigma = 0$: réflexion spéculaire où la vitesse tangentielle des molécules réfléchies à la paroi est inchangée mais leur vitesse normale est inversée. Dans ce cas, il n'y a pas un échange du moment tangentiel entre les molécules et la paroi du solide, c-à-d qu'il n'y a pas de frottement correspondant à un fluide non visqueux.

- $\sigma = 1$: diffusion totale où les molécules réfléchies à la paroi ont une vitesse tangentielle nulle. La diffusion totale est un cas important pour un échange du moment tangentiel entre les molécules du gaz et la paroi du solide.

Le coefficient d'accommodation σ dépend du type du gaz, de la température de la paroi du solide, de la pression locale, de la vitesse du gaz et de la direction moyenne de l'écoulement. La mesure directe du coefficient d'accommodation est souvent difficile. Pour une surface rugueuse, le coefficient d'accommodation est souvent égal à 1 (Beskok et Karniadakis 1999).

De même, Smoluchowski (1898) a proposé une condition aux limites pour la température sur l'interface fluide/solide :

$$T - T_w = \frac{2 - \sigma_T}{\sigma_T}[\frac{2\gamma}{\gamma + 1}]\frac{K_n}{P_r}(\frac{\partial T}{\partial n})_s \qquad \textit{Equation I- 25}$$

avec T: température du fluide

T_w: température de la paroi

σ_T: coefficient d'accommodation thermique

K_n: nombre de Knudsen

P_r: nombre de Prandtl ($P_r = \frac{C_p \mu}{k}$)

C_p: capacité thermique massique (unité : $J.Kg^{-1}.K^{-1}$)

k: conductivité thermique (unité : $W.m^{-1}.K^{-1}$)

Le modèle de Maxwell est un modèle du 1er ordre. En négligeant les effets thermiques, il est simplifié comme suit :

$$U_t - U_w = -C_1 K_n(\frac{\partial U}{\partial n})_s \qquad \textit{Equation I- 26}$$

avec C_1: coefficient du 1er ordre

D'après Sreekanth (1969), le modèle de Maxwell reste valable jusqu'à un nombre de Knudsen de 0,13 pour les mesures avec de l'azote. D'après Piekos et Breuer (1995), le modèle de Maxwell s'arrête pour une valeur de Knudsen de 0,15.

Le modèle du 1er ordre permet d'investiguer analytiquement le comportement du fluides isothermiques et localement bien établi dans les canaux ou les tubes par la résolution des équations de Navier-Stokes. En comparant avec les solutions numériques de l'équation de Boltzmann, DSMC (Direct Simulation of Monte Carlo) et les expérimentations, le modèle du 1er ordre se révèle valable pour des nombres de Knudsen jusqu'à 0,1 (Harley et al. 1995, Liu et al.1995, Shih et al.1996, Arkilic et al.1997, Arkilic et al.2001, Dongari et al.2007, Maurer et al.2003).

3.4.2.2. Modèle du 2ème ordre

Quand le nombre du Knudsen est plus grand, l'effet de glissement moléculaire prend de l'importance : des déviations des modèles du 1er ordre sont observées (Ziarani et Aguilera 2011). Certains auteurs proposent un ajout d'un terme du 2ème ordre dans le modèle du 1er ordre (Chapman et Cowling 1970) :

$$U_t - U_w = -C_1 K_n(\frac{\partial U}{\partial n})_s - C_2 K_n^2(\frac{\partial^2 U}{\partial n^2})_s \qquad \textit{Equation I- 27}$$

avec U_w : vitesse de la paroi du solide

U_t: vitesse tangentielle du fluide

λ: libre parcours moyen

C_1: coefficient du 1er ordre

C_2: coefficient du 2nd ordre

Partant de modèles différents, différents couples des coefficients C_1et C_2 ont été proposés. Ils sont résumés dans le Tableau I- 1.

Tableau I- 1. Coefficients C_1et C_2 pour le modèle du 2nd ordre proposés dans la littérature.

Auteurs	$\boldsymbol{C_1}$	$\boldsymbol{C_2}$	Configuration	Modèle	Kn
Darcy	0	0		Loi de Darcy	Kn≤0,001
Maxwell (1879)	1	0		Théorie cinétique des gaz	Kn≤0,1
Schamberg (1947)	1	$\frac{5\pi}{12}$		Modèle du 2nd ordre	Kn≤0,1
Albertoni et al. (1963)	1,14665	0	Tube	Modèle du BGK	Kn<0,1
Cercignani (1964)	1,1466	0,9756	Canal	Modèle du Boltzmann linéarisé	Kn<0,1
Deissler (1964)	1	$\frac{9}{8}$		Modèle du 2nd ordre	Kn<0,1
Sreekanh (1969)	1,1466	0,14	Tube	Expérimentation sur l'Azote	Kn≤0,237
Chapman et Cowling (1970)	1	0,5		Modèle du Boltzmann linéarisé	Kn≤0,1
Hsia et Domoto (1983)	1	0,5		Modèle du 2nd ordre	Kn≤0,1
Shen et al. (2007)	1	0,5		Modèle du BGK	Kn≤0,1
Loyalka et Hickey (1989)	1,1019	0,4490		Modèle du BGK	Kn<0,1
Mitsuya (1993)	1	$\frac{2}{9}$		Modèle du 1,5 ordre	Kn≤2
Beskok et Karniadakis (1996)	1	-0,5		Modèle du 2nd ordre	Kn<0,1
Pan et al. (1999)	1,1254	0	Deux plaques	Modèle de DSMC	Kn<0,1
Sun et al. (2002)	0,62228	0,3872		Modèle de DSMC	

Cercignani (1964) Hadjiconstantinou (2003)	1,1466	0,647	Canal/Tube	Modèle du Boltzmann linéarisé	Kn⩽0,4
Wu et al. (2003)	2/3	1/4	Deux plaques	Modèle du 2nd ordre	Kn<1
Shen et al. (2007)	1	1/2	Deux plaques	Modèle du BGK	K≤0,1
Lockerby et al. (2008)	0,798	-0,278	Canal	Modèle du BGK	Kn<0,6
Struchtrup et Torrilhon (2008)	1	0,531	Canal, tube	Modèle de R13 sans la couche de Knudsen	Kn<0,3
	1,0462	0,5238		Modèle de R13 avec la couche de Knudsen	
Lorenzani (2011)	1,1209	0,2347	Deux plaques, canal	Modèle de DSMC	Kn<1
	1,1366	0,69261		Modèle du BGK	
Gibelli (2012)	1,1144	0,49522	Deux plaques	Modèle de DSMC	Kn≤0,4

Considérant un flux en 2D bien établi dans un tube, nous obtenons pour la vitesse axiale $U_z(r)$:

$$U_z(r=R) = \frac{1}{4\mu}\frac{dP}{dz}R^2 + A_2 = -C_1K_n(\frac{\partial U}{\partial n})_s - C_2K_n^2(\frac{\partial^2 U}{\partial n^2})_s \qquad \textit{Equation I- 28}$$

A_2 est ensuite calculé par l'Equation I- 28:

$$A_2 = -\frac{R^2}{4\mu}\frac{dP}{dz}(1 + 2C_1K_n + 2C_2K_n^2) \qquad \textit{Equation I- 29}$$

La vitesse axiale $U_z(r)$ dans le tube devient alors :

$$U_z(r) = -\frac{R^2}{4\mu}\frac{dP}{dz}[1 - (\frac{r}{R})^2 + 2C_1K_n + 2C_2K_n^2)] \qquad \textit{Equation I- 30}$$

De même, on retrouve le débit volumique Q dans le tube :

$$Q = \int_0^{2\pi} d\emptyset \int_0^R U_z(r)rdr = \frac{\pi R^4}{8\mu}\frac{\Delta P}{L}(1 + 4C_1K_n + 4C_2K_n^2) \qquad \textit{Equation I- 31}$$

Combinant l'Equation I- 31 et l'équation de Darcy, on obtient la perméabilité apparente pour le milieu poreux constitué de tubes cylindriques identiques droits et placés en parallèle en fonction du nombre de Knudsen :

$$K_{app} = \frac{\varepsilon_a R^2}{8}(1 + 4C_1K_n + 4C_2K_n^2)$$ *Equation I- 32*

L'Equation I- 32 est une équation d'ordre 2 pour Kn. Quand $C_2 = 0$, elle devient l'équation du 1er ordre appelant l'équation de Klinkenberg (Klinkenberg 1941) :

$$K_{app} = \frac{\varepsilon_a R^2}{8}(1 + 4C_1K_n)$$ *Equation I- 33*

Où la perméabilité intrinsèque K_∞ (tel que Kn tend vers 0) est donnée par:

$$K_\infty = \frac{\varepsilon_a R^2}{8}$$ *Equation I- 34*

En mettant l'Equation I- 34 dans l'Equation I- 32, elle peut s'écrire comme suit :

$$K_{app} = K_\infty(1 + 4C_1K_n + 4C_2K_n^2)$$ *Equation I- 35*

Notant qu'il n'y a pas un accord sur les valeurs des coefficients C_1et C_2 dans le modèle du 2nd ordre surtout pour le terme C_2. La solution analytique des équations de Navier-Stokes dans le régime d'écoulement avec glissement est une approximation de résolution de DSMC qui est considérée comme une solution de référence (Bird 1994) dans le domaine du micro-fluidique.

3.4.2.3. Modèle de l'ordre supérieur

L'effet de glissement moléculaire devient plus important pour Kn>0,1 en régime transitoire voire en régime de glissement moléculaire annoncent l'échec de prédiction par le modèle du 2nd ordre. Néanmoins, la complexité de configuration géométrique implémentée dans le terme du 2nd ordre ($o(K_n^2)$) conduit à des difficultés de calcul. Ceci explique qu'un modèle d'ordre supérieur, qui serait valable pour de grandes valeurs du nombre de Knudsen est encore à construire.

Beskok et Kardianakis (1999) proposent une condition aux limites de l'ordre supérieur pour la vitesse pour le flux compressible :

$$U_t - U_w = \frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_n}{1 - bK_n}\frac{\partial U}{\partial n}$$ *Equation I- 36*

Où b est un paramètre empirique (b=-1 dans le régime d'écoulement avec glissement d'après Beskok). Prenant le coefficient d'accommodation σ=1 et b=-1. La série de Taylor pour $\frac{K_n}{1-bK_n}$ conduit à:

$$\frac{K_n}{1 + K_n} = K_n - K_n^2 + K_n^3 + o(K_n^3)$$ *Equation I- 37*

On peut voir dans l'Equation I- 37 que les modèles du 1er et 2nd ordre sont des modèles simplifiés du modèle de l'ordre supérieur (Beskok et Kardianakis 1999).

Prenant le modèle de Beskok on obtient pour la vitesse axiale dans le tube :

$$U_z(r) = -\frac{R^2}{4\mu}\frac{dP}{dz}[1-\left(\frac{r}{R}\right)^2 + 2\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_n}{1-bK_n}] \qquad \textit{Equation I- 38}$$

Le débit volumique Q devient pour l'écoulement isothermique :

$$Q = \int_0^{2\pi} d\emptyset \int_0^R U_z(r) r dr \; = -\frac{\pi R^4}{8\mu}\frac{dP}{dz}[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_n}{1-bK_n}] \qquad \textit{Equation I- 39}$$

Beskok a introduit un coefficient de raréfaction $C_r(K_n)$ dans la viscosité dynamique :

$$C_r(K_n) = 1 + \alpha K_n \qquad \textit{Equation I- 40}$$

La viscosité dynamique devient alors :

$$\mu(K_n) = \frac{\mu_0}{C_r(K_n)} = \mu_0[\frac{1}{1+\alpha K_n}] \qquad \textit{Equation I- 41}$$

Le débit volumique dans le tube devient :

$$Q = -\frac{\pi R^4}{8\mu_0}\frac{dP}{dz}(1+\alpha K_n)[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_n}{1-bK_n}] \qquad \textit{Equation I- 42}$$

La perméabilité apparente est calculée par la loi de Darcy :

$$K_{app} = \frac{\varepsilon_a R^2}{8}(1+\alpha K_n)[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_n}{1-bK_n}] \qquad \textit{Equation I- 43}$$

Où :

$$\alpha = \alpha_0 \frac{2}{\pi}\tan^{-1}(\alpha_1 Kn^{\beta 1}) \qquad \textit{Equation I- 44}$$

Avec $\alpha_1 = 4{,}0 \; et \; \beta_1 = 0{,}4$. Dans le régime d'écoulement avec glissement (b=-1), α_0 est:

$$\alpha_0 = \frac{64}{15\pi} \qquad \textit{Equation I- 45}$$

α s'approche de α_0 dans le régime de glissement moléculaire :

$$\alpha_0 \equiv \alpha_{Kn\to\infty} = \frac{64}{3\pi(1-\frac{4}{b})} \qquad \textit{Equation I- 46}$$

Loyalka et Hamoodi (1990), Civan (2010) ont aussi proposés une formule pour calculer α:

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{A}{Kn^B}}$$ *Equation I- 47*

Où A=0,170, B=0,4348 et α_0=1,358.

Xue et Fan (2000) a proposé un autre modèle supérieur à prolonger la validité de la résolution des équations de Navier-Stokes en régime de transition par introduction d'une fonction tangente hyperbolique :

$$U_t - U_w = \frac{2-\sigma}{\sigma}\tanh(K_n)\frac{\partial U}{\partial n}$$ *Equation I- 48*

De même, la perméabilité pour un milieu poreux constitué de tubes cylindriques identiques droits et placés en parallèle est :

$$K_{app} = \frac{\varepsilon_a R^2}{8}[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\tanh(K_n)]$$ *Equation I- 49*

3.4.3. Régime de transition ($0, 1 < Kn < 10$)

Il n'existe pas de solution analytique pour le cylindre réduit dans le régime de transition. Néanmoins, certaines formules empiriques sont données, basées sur le type du gaz, le type du matériau du tube et le ratio de longueur du tube par rapport au rayon. Pour un cylindre de longueur réduite, le débit massique peut être obtenu dans le régime visqueux pour une différence de pression $\Delta P/P_m \ll 1$. Le cylindre peut être considéré comme une résistance au flux : quand le tube est plus long, le débit massique devient plus petit pour la même différence de pression. Donc, la résistance hydraulique est proportionnelle à la longueur du tube. Comme les effets d'entrée du cylindre ont créé une résistance supplémentaire pour le flux, l'idée est de remplacer la longueur réelle par une longueur effective. Pour le débit massique normalisé dans le cylindre :

$$G_P^{tb} = \frac{\delta_I}{4}\frac{L}{L + \Delta L^{tb}}$$ *Equation I- 50*

avec ΔL^{tb} : longueur supplémentaire :

$$\Delta L^{tb} = \frac{3\pi}{8}$$ *Equation I- 51*

Sharipov et Seleznev (1998) ont proposé pour tous type du gaz et tous types du capillaire pour $\Delta P/P_m \ll 1$:

$$G_P^{tb} = G_d + \frac{G_0 G_t}{G_0 + G_t}$$ *Equation I- 52*

avec :

$$G_d = \frac{1{,}50}{1 + 1{,}14\delta_I}\left[1 + \frac{\frac{0{,}0547\delta_I L(0{,}793\delta_I - 1)}{1 + 0{,}042L}}{1 + 17{,}7\delta_I + 4{,}64\delta_I^2 + 5{,}02\delta_I^3}\right] \times [1 + \frac{2{,}53\delta_I + \frac{2{,}67}{W^{tb}} - L}{(1 + 1{,}61\delta_I)L}]^{-1}$$ *Equation I- 53*

$$G_0 = \frac{2\delta_I L}{3\pi}[1 + \frac{1{,}35}{1 + 0{,}557\delta_I}]$$ *Equation I- 54*

$$G_t = \frac{\delta_I}{4}[1 + \frac{3{,}79}{1 + 0{,}954\delta_I}]$$ *Equation I- 55*

Le débit massique iso-thermique pour le tube réduit dans le régime de glissement moléculaire :

$$\dot{M}_{fm}^{tb} = R^2(\frac{\pi m}{2k_B})^{1/2} W^{tb} \frac{\Delta P}{\sqrt{T}}$$ *Equation I- 56*

avec W^{tb} : probabilité de transmission pour le tube réduit :

$$W^{tb} = 1 + \frac{L^2}{4} - \frac{L}{4}(L^2+4)^{\frac{1}{2}} - \frac{[(8-L^2)(L^2+4)^{\frac{1}{2}} + L^3 - 16]^2}{72L(L^2+4)^{\frac{1}{2}} - 288\ln[\frac{L}{2} + (\frac{L^2}{4}+1)^{\frac{1}{2}}]}$$ *Equation I- 57*

L'Equation I- 57 peut évaluer le débit pour un tube d'une longueur arbitraire.

3.4.4. Régime de Knudsen ($Kn > 10$)

Dans le régime visqueux, l'écoulement dans un tube de section circulaire est étudié et une formule de Poiseuille est dérivée. Cette formule est valable pour le flux laminaire sous les pressions ordinaires donc le nombre de Knudsen est très petit. D'après nos connaissances, il n'existe pas de solution théorique pour l'écoulement en pression intermédiaire où le libre parcours moyen est comparable avec la dimension caractéristique du tube (en régime de transition : 0,1<Kn<10). Cependant, il existe un traitement théorique quand le libre parcours moyen est très grand devant la dimension caractéristique du tube. Ce régime est appelé le régime de Knudsen ou le régime de glissement moléculaire. Dans ce régime, les molécules du gaz entrent en collision avec les parois du solide plus souvent que les collisions intermoléculaires. Pour un traitement théorique simple, seules les collisions entre les molécules du gaz et les parois du solide sont prises en compte.

Considérant une diffusion totale sur la paroi du pore (σ=1) dans le régime de Knudsen, Present (1958) a donné une formule pour le débit massique dans un tube :

$$\dot{M} = \frac{4a^3}{3}\sqrt{\frac{2\pi M}{RT}}\frac{\Delta P}{L}$$ *Equation I- 58*

Le débit volumique devient alors :

$$Q = \frac{\dot{M}}{\rho} = \frac{4a^3}{3P}\sqrt{\frac{2\pi RT}{M}}\frac{\Delta P}{L}$$ *Equation I- 59*

L’ Equation I- 59 peut évaluer le débit pour un tube d’une longueur arbitraire.

4. Perméabilité du bois

4.1. Mesure de perméabilité aux gaz

Différents chercheurs mesurent la perméabilité aux gaz selon les différentes méthodes expérimentales pour déterminer le débit.

Rice et Onofrio (1996) ont mesuré la perméabilité intrinsèque dans la direction longitudinale à l’aide de débitmètre. Dans leur travail, ils utilisent deux débitmètres de plages différentes : un débitmètre digital qui mesure la plage du débit de 0,1-5,01 ml/min avec une précision de 0,05 l/min, un autre débitmètre mesure la plage du débit de 1-100 ml/min avec une précision de 5% de la plage de mesure. Ensuite, le débit est déterminé par ces débitmètres en réponse à une différence de pression imposée sur l’échantillon. Les perméabilités sont déterminées à pression atmosphérique.

Rogério et al. (2010) ont aussi utilisé des débitmètres pour mesurer le débit. Ils ont mesuré la perméabilité de l’air de quelques espèces d'eucalyptus dans la direction longitudinale avec 3 débitmètres avec les plages de mesure suivantes : 20-180 ml/min, 10-100 l/h et 100-1100 l/h. Le débit est créé par un vide initial de 91 kPa à la sortie de l’échantillon à l’aide d’une pompe à vide.

Ces deux travaux ont déterminé la perméabilité dans la direction longitudinale. A part les mesures par débitmètre d'autres chercheurs utilisent le principe de changement du niveau de l’eau dans une éprouvette. Ces mesures sont plus fastidieuses mais plus précises et permettent la mesure de perméabilité selon les trois directions d'anisotropie (Taghiyari 2013, Cai et Oliveira 2007, Wang et al. 1991, Tanaka et al. 2015). En mesurant le débit de gaz grâce à la perte de charge lors du passage du débit dans des tubes capillaires étalonnés, Perré (1987) a également mesuré la perméabilité au gaz de plusieurs espèces de bois dans les trois directions d'anisotropie.

Toutes les mesures mentionnées précédemment mesurent la perméabilité apparente à pression atmosphérique. Afin d’étudier les effets de glissement moléculaire dans le bois, Lu et Avramidis (1999) ont mesuré la perméabilité apparente de chêne, aulne rouge, pin, sapin de Douglas en direction longidudinale sur une plage de pression de 100-400 mbar.

Le Tableau I- 2 ci-dessous résume les différentes méthodes utilisées dans la littérature :

Tableau I- 2. Résumé des travaux expérimentaux sur la mesure de la perméabilité apparente du bois.

Auteurs	Espèces	Directions	Plage de pression	Détermination du débit massique
Rice et Onofrio (1996)	Pin blanc, Epinette rouge, Sapin baumier	L	1 bar	Débitmètre
Rogério et al. (2010)	Gommier rose, Eucalyptus citronné	L	1 bar	Débitmètre
Taghiyari (2013)	Hêtre, Peuplier, Charmes	L	1 bar	Mesure du changement du niveau de l’eau dans une éprouvette
Cai et Oliveira (2007)	Sapin subalpin	L, R, T	1 bar	Débitmètre, rotamètre

Wang et al. (1991)	Pin, Peuplier, Larix, Bouleau	L, R, T	1 bar	Mesure du changement du niveau de l'eau dans une éprouvette
Tanaka et al. (2015)	Cèdre du Japon	L, R, T	1 bar	Mesure du changement du niveau de l'eau dans une éprouvette
Perré (1987)	Epicéa, pin sylvestre, pin maritime	L, R, T	400-1000 mbar	Perte de charge dans un capillaire étalonné
Lu et Avramidis (1999)	Chêne, Aulne rouge, Pin, Sapin de Douglas	L	100-400 mbar	Débitmètre, rotamètre, mesure du changement du niveau de l'eau dans une éprouvette
Petty et Preston (1969)	Certaines espèces de résineux	L, T	1-700 mmHg	Mesure du changement du niveau de l'eau dans une éprouvette

Dans une autre étude importante de Petty et Preston (1969), un autre dispositif destiné à mesurer la perméabilité gazeuse à différentes pressions moyennes est proposé (Figure I- 11, Figure I- 12).

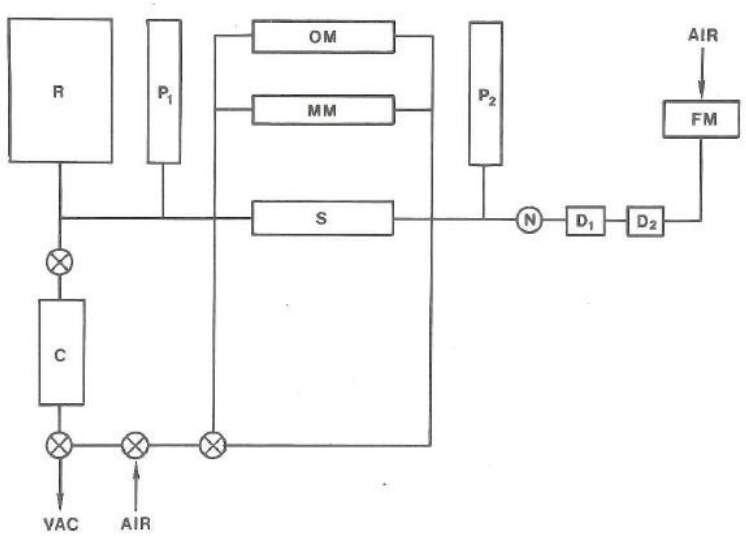

Figure I- 11. Le schéma du dispositif expérimental de Petty pour la mesure de la perméabilité gazeuse C : manostat cartésien ; R : réservoir du gaz ; P1 et P2 : manomètre à mercure pour le vide ; MM : manomètre à mercure différentiel ; OM : manomètre de pression d'huile différentiel ; S : échantillon ; N : vanne à pointeau ;1 : dessiccateur du gel de silice ; D2 : dessiccateur P2O5 ; FM : appareil pour mesurer le débit volumique, composé par les burettes, les rotamètres (Siau 1984).

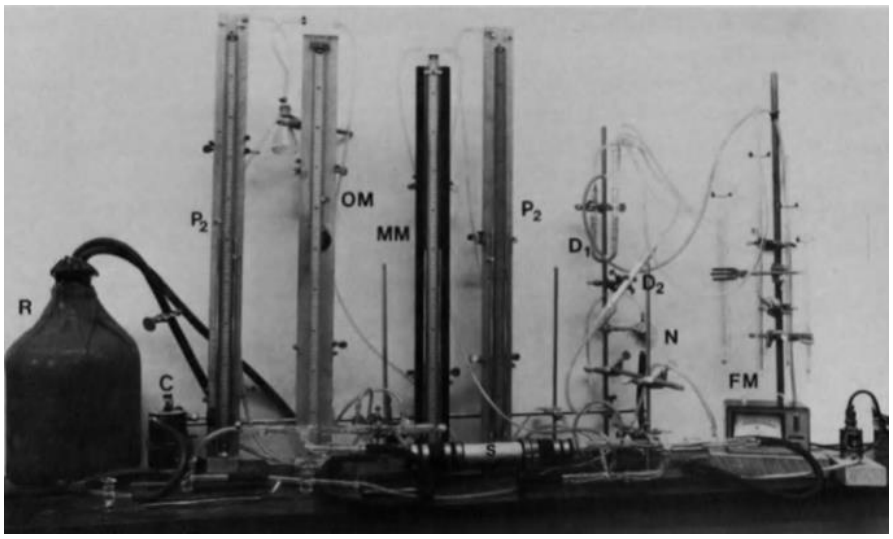

Figure I- 12. Dispositif expérimental pour mesurer la perméabilité gazeuse utilisé par Petty (Siau 1984).

Dans son dispositif, l'écoulement de l'air séché à travers l'échantillon du bois est contrôlé par une vanne à pointeau et la différence de pression à travers l'échantillon est mesurée par un manomètre de pression d'huile différentiel. Ce dernier est rempli d'une huile à la faible pression de la vapeur. La chute de pression à travers le bois peut être mesurée par ce manomètre de pression d'huile différentiel. La pression dans le réservoir du gaz augmente en raison de la quantité du gaz rentrant et on pourra répéter la manip à une autre pression moyenne. Pour mesurer le débit volumique de l'air, on utilise les burettes (le débit volumique est mesuré par le déplacement de l'eau dans une burette et on mesure son volume dans une durée finie à la pression atmosphérique), le rotamètre ou le débitmètre électronique (la plage de mesure pour le débitmètre électronique est jusqu'à $10\ ml/min$ avec une précision de $0{,}1\ ml/min$).

4.2. Variabilité et anisotropie du bois

Du fait de son origine biologique et en raison de très grande différence de plans ligneux, la perméabilité du bois présente une variabilité que l'on pourrait qualifier de gigantesque. Siau (1984) a résumé dans son travail les ordres de grandeur de la perméabilité pour différentes essences de bois dans la direction longitudinale (Tableau I- 3). L'essence la plus perméable est le chêne rouge car il possède des vaisseaux de grande taille et sans thylle. Des perméabilités relativement plus petites que le chêne rouge sont observées pour des espèces qui possèdent des trachéides ou des vaisseaux de taille moyenne.

Tableau I- 3. Ordre de grandeur de la perméabilité longitudinale de quelques essences du bois d'après Siau (1984).

<table>
<tr><th>Perméabilité longitudinale (m²)</th><th colspan="2">Espèces</th></tr>
<tr><td>10^{-10}</td><td rowspan="2">Chêne rouge</td><td></td></tr>
<tr><td>10^{-11}</td><td>Tilleul</td></tr>
<tr><td>10^{-12}</td><td colspan="2">Erable, aubier de pin, aubier de douglas</td></tr>
<tr><td>10^{-13}</td><td>Aubier de l'épinette</td><td rowspan="2">Aubier de thuya</td></tr>
<tr><td>10^{-14}</td><td rowspan="2">Duramen du douglas, bouleau, thuya et chêne blanc</td></tr>
<tr><td>10^{-15}</td><td></td></tr>
<tr><td>10^{-16}</td><td colspan="2" rowspan="3">Perméabilité transversale (approximativement les mêmes espèces dans le même ordre)</td></tr>
<tr><td>10^{-17}</td></tr>
<tr><td>10^{-18}</td></tr>
</table>

Par ailleurs, puisque l'un des rôles du bois dans l'arbre est d'assurer la circulation de la sève brute, sa structure anatomique est organisée afin de privilégier fortement la direction axiale de l'arbre. En plus de sa variabilité, le bois est également fortement anisotrope, notamment pour la perméabilité. Le Tableau I- 4 résume les perméabilités intrinsèques selon les différentes directions.

Pour la même essence du bois, la perméabilité longitudinale est toujours beaucoup plus grande que les perméabilités dans les deux autres directions (il peut atteindre un facteur de 10^5 pour K_L/K_T ou K_L/K_R). Pour les deux autres directions, les rapports de perméabilité varient dans de moindres proportions. Wang et al. (1991) ont mesuré des ratios de K_R/K_T de 1,5 et 9 pour l'aubier et le duramen du pin, respectivement. Ils ont mesuré des ratios de K_R/K_T de 1,3 pour le duramen du mélèze. Par contre, K_R/K_T est inférieur à 1 pour l'aubier du mélèze. L'écoulement du fluide dans la direction radiale peut passer par les rayons ligneux donc la perméabilité radiale est généralement plus grande que la perméabilité tangentielle. Pour les feuillus, des ratios de K_T/K_R de 156 et 1,3 sont observés pour l'aubier et le duramen du peuplier (26 et 1,75 pour le bouleau).

Tableau I- 4. Résumé des perméabilités intrinsèques du bois dans les différentes directions L, R et T.

Auteurs	Espèces	Perméabilité intrinsèque		
		L ($\times 10^{-12}$ m²)	R ($\times 10^{-16}$ m²)	T ($\times 10^{-16}$ m²)
Choong et al. (1968, 1974)	Peuplier	0,59-0,61	0,15	0,18-0,44
	Aulne rouge	1,9	0,15	0,12
	Liquidambar	2,7	0,19	0,69
	Tulipier	5,4		0,8
	Sequoia	0,25-4,9	0,11-11,2	0,89-19,4
	Sapin de Douglas	0,026-0,049	0	0-0,37
	Pin	0,0026		0,17
	Erable rouge	7,4-10,3		
	Tulipier	1,87-28,9		
	Liquidambar	13,9-15,3		
	Chêne rouge	56-62		
	Chêne	13-69		
Perré et al. (1987, 2002)	Epicéa	0,02-0,2	0,03	
	Pin sylvestre	0,07	0,42	
	Pin maritime	0,15	8,6	
	Hêtre	1,4-3,8		
	Peuplier	0,03		
	Pin blanc	0,233		

Rice et Onofrio (1996)	Epinette rouge	0,017		
	Sapin baumier	0,034		
Rogério et al. (2010)	Gommier rose	0,45-12,26		
	Eucalyptus citronné	0-11,02		
Wang et al. (1991)	Pin	0,03-0,16	0,05-0,21	0,007-0,14
	Peuplier	0,54	0,014-0,09	0,02-15
	Larix	0,023	0,012	0,009
	Bouleau		0,41-0,44	0,72-889
Tanaka et al. (2015)	Cèdre du Japon	0,12-2,4	0,053-0,3	0,16-3,7

Remarque : la perméabilité apparente est toujours plus grande que la perméabilité intrinsèque. Le Tableau I- 5 montre certains résultats de littérature de la perméabilité apparente en fonction de la pression moyenne.

Tableau I- 5. Résumé des perméabilités apparentes du bois en fonction de la pression moyenne.

Auteurs	Espèces	Plage de pression moyenne	Direction	Perméabilité apparente	Perméabilité intrinsèque
Lu et Avramidis (1999)	Chêne	100-250 mbar	L	21-22($\times 10^{-12}$ m²)	20,915($\times 10^{-12}$ m²)
	Aulne rouge	100-400 mbar	L	8-16($\times 10^{-12}$ m²)	7,051($\times 10^{-12}$ m²)
	Pin	100-400 mbar	L	0,6-1,5($\times 10^{-12}$ m²)	0,514($\times 10^{-12}$ m²)
	Sapin de Douglas	100-500 mbar	L	0,07-0,25($\times 10^{-12}$ m²)	0,068($\times 10^{-12}$ m²)
Petty et Preston (1969)	Epicéa de Sitka	1-700 mm Hg	L	1,78-29,4 µl min^{-1} (mm oil)$^{-1}$	

4.3. Effet de l'humidité

Pour le bois avec une humidité au-dessus du point de saturation des fibres, de l'eau liquide existe dans les lumens des cellules. Une partie des pores sont bouchés par cette phase liquide et la perméabilité au gaz est bien évidemment plus faible (Siau 1984). L'écoulement en milieu partiellement saturé fait appel à la notion de perméabilité relative qui ne sera pas plus détaillée dans ce travail (Perré 2007).

Dans le domaine hygroscopique, il n'y a théoriquement pas d'eau libre présente dans les pores du bois, mais l'eau liée induit un gonflement qui modifie la morphologie des pores. En général, pour le bois avec une humidité en-dessous du point de saturation des fibres, la perméabilité augmente lorsque l'humidité diminue. L'augmentation de la perméabilité est de deux à trois fois pour une diminution de la teneur en eau de 24% à 6%. Comstock (1968) a expliqué cette augmentation de la perméabilité par le retrait des micro-fibrilles dans le margo des ponctuations aréolées, ce qui libère plus de section pour l'écoulement du gaz.

4.4. Effet de la longueur

Dans le cas du bois, il a souvent été constaté que la perméabilité varie avec la longueur de l'échantillon.

Lu et Avramidis (1997) ont constaté que la perméabilité longitudinale reste constante à partir d'une certaine longueur pour les différentes essences du bois. Ils ont trouvé les longueurs où la perméabilité est constante de 140, 100, 60 et 40 mm pour le chêne rouge, l'Aulne rouge, le pin jaune et le pin d'Oregon, respectivement. En-dessous de ces longueurs, la perméabilité augmente avec la diminution de la longueur. Les différences de perméabilité sur les différentes longueurs des échantillons viennent du blocage aléatoire dans les capillaires du bois.

Perré et Karimi (2002) ont mesuré la perméabilité longitudinale sur les échantillons du hêtre successivement raccourcis. Ils ont trouvé que la perméabilité augmente lorsque la longueur de l'échantillon du hêtre se réduit progressivement de 40 à 10 cm. Ce comportement a été expliqué par l'augmentation de la probabilité de connexion des lumens des cellules lorsque la longueur de l'échantillon diminue. Un modèle de percolation de connexion a en effet permis de retrouver ce comportement.

4.5. Modèles morphologiques simples de perméabilité du bois

Le bois est un matériau poreux très hiérarchisé. Le transport de fluides dans le bois peut donc être modélisé par des réseaux de différents éléments conducteurs agencés en série et/ou en parallèle. Plusieurs modèles capillaires ont été utilisés pour décrire les écoulements dans le bois :

- Modèle de pores identiques en parallèle
- Modèle de Carman-Kozeny Modèle de séries de pores non identiques en parallèle
- Modèle de Comstock

On commence par présenter le modèle de pores identiques placés en parallèle qui ne considère qu'une taille uniforme de pore. Ce modèle correspond assez bien à la structure des feuillus dans la direction longitudinale (Siau 1984). On présente ensuite le modèle de Carman-Kozeny qui est un modèle phénoménologique basé sur le cheminement des fluides sachant que les pores de différentes tailles (trachéide/ponctuations) ne sont pas tous interconnectés. En continuant dans la complexité morphologique, nous continuons avec le modèle de séries de pores non identiques placés en

parallèle qui prend en compte les interconnexions entre des pores de deux tailles différentes (Petty 1970). Finalement, on présente le modèle de Comstock pour les écoulements des fluides chez les résineux, qui permet de retrouver les rapports d'anisotropie observés (Comstock 1970).

4.5.1. Modèle de pores identiques en parallèle

Un modèle de simple perméabilité considère que le bois est constitué d'une seule taille de pores. Chaque pore est assimilé à un tube capillaire droit (tortuosité = 1) ayant une section constante. Ces cylindres sont identiques et ils sont agencés en parallèles dans le sens de l'écoulement des fluides (Figure I- 13).

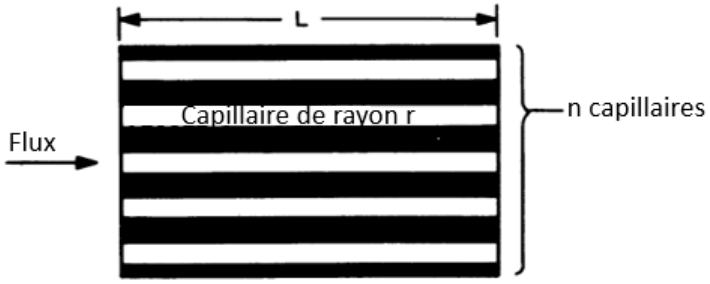

Figure I- 13. Schéma du modèle de pores identiques en parallèle (Siau 1984).

D'après ce modèle, la perméabilité est donnée par :

$$K = \frac{\varepsilon r^2}{8} \qquad \textit{Equation I- 60}$$

avec ε : porosité du milieu poreux (porosité connectée)

r : rayon des capillaires

Siau (1984) a mentionné que ce modèle peut être appliqué aux feuillus dans la direction longitudinale. Smith et Lee (1958) ont comparé les valeurs de ε et r calculées par ce modèle et les données expérimentales et ont trouvé un accord raisonnable pour certaines essences de feuillus.

4.5.2. Modèle de Kozeny-Carman

Le modèle de Kozeny-Carman (Kozeny 1927, Carman 1956) est un modèle phénoménologique qui décrit par une relation assez simple la perte de charge de filtration du fluide dans le milieu poreux.

Dans ce modèle, le matériau poreux (Figure I- 14) est supposé équivalent à une conduite tortueuse ayant une section constante le long de son axe en moyenne (Dullien 1991). D'après la théorie de Kozeny-Carman, ce modèle n'est valable que pour le flux laminaire.

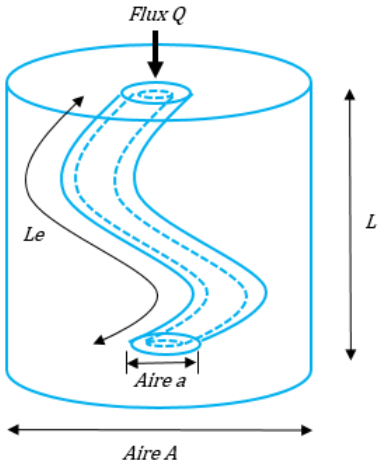

Figure I- 14. Schéma d'après le modèle de Kozeny-Carman: le flux circuit dans un chemin tortueux du milieu poreux.

La perméabilité du type de Kozeny-Carman est donnée par Dullien (1991) :

$$K = \frac{\varepsilon D_H^2}{16 k_0 (L_{eff}/L)^2} \qquad \textit{Equation I- 61}$$

avec ε : porosité

k_0 : facteur de forme de Kozeny-Carman qui dépend de la géométrie, il est proposé d'être entre 2 et 3 d'après Carman.

$(L_{eff}/L)^2$: tortuosité notée τ, qui reflète l'allongement de l'écoulement dû au cheminement sinueux. C'est une grandeur adimensionnelle.

D_H : diamètre hydraulique (unité : m), défini par :

$$D_H = 4 \times \frac{V_{pore}}{S_{pore}} \qquad \textit{Equation I- 62}$$

avec V_{pore} : volume des pores (unité : m^3)

S_{pore} : surface des pores (unité : m^2)

4.5.3. Combinaison série/parallèle de pores non identiques

Le modèle de séries de pores non identiques en parallèle a été proposé par Petty (1970). Afin d'analyser l'effet du glissement moléculaire à la paroi cet auteur reportait la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne (Figure I- 15).

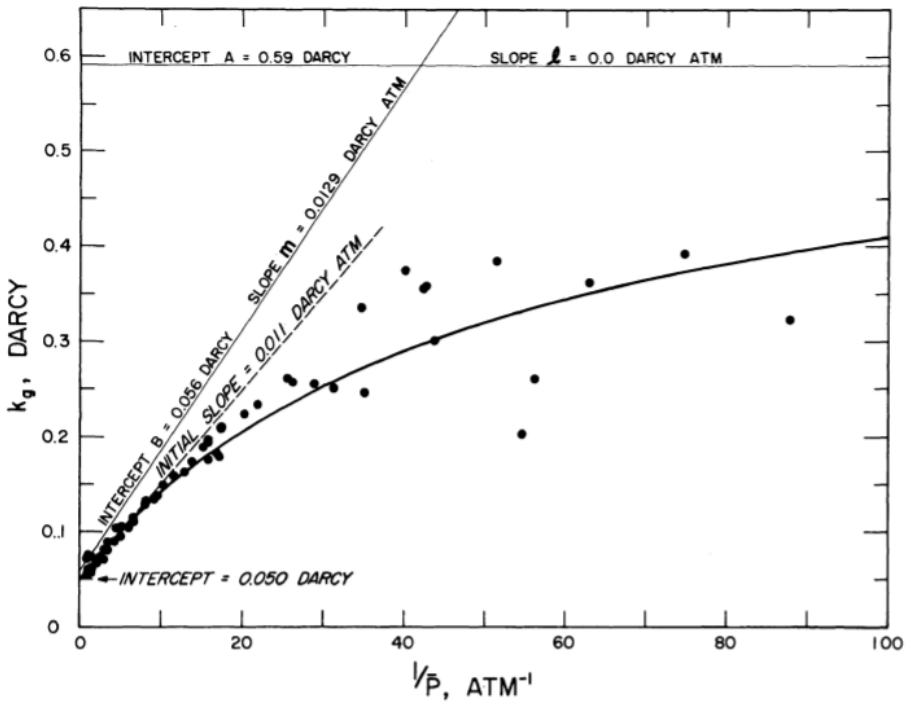

Figure I- 15. Perméabilité longitudinale en fonction de l'inverse de pression moyenne pour le frêne blanc : mesures expérimentales (points) et courbe d'interpolation par la méthode de moindre carré. (Siau, 1984).

Il considère que la forme de la courbe provient de la contribution de deux conductances différentes placées en série, i.e., la résistance hydraulique dans la trachéide ou le vaisseau et la résistance dans les ponctuations (Figure I- 16). Le grand pore est en série avec n petits pores en parallèle. Cet agencement de pores en série/parallèle constitue le réseau poral du bois.

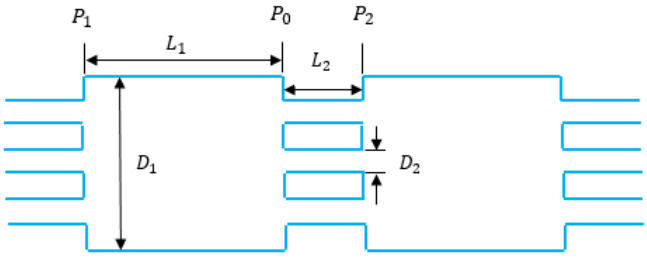

Figure I- 16. Schéma d'après le modèle de Petty : le grand cylindre (longueur : L_1, diamètre : D_1) représente la trachéide chez les résineux ou le vaisseau chez les feuillus, les petits cylindres (longueur : L_2, diamètre : D_2) représentent les ponctuations entre les gros pores.

La conductance mesurée est liée à l'agencement de deux composants :

$$\frac{1}{g} = \frac{1}{g_1} + \frac{1}{g_2} \qquad \textit{Equation I- 63}$$

Où g : conductance du réseau

g_1 : conductance des gros pores

g_2 : conductance des ponctuations

Cette conductance g peut s'exprimer en fonction de la perméabilité gazeuse comme suit:

$$g = K_L \frac{C}{L}$$ *Equation I- 64*

avec K_L : perméabilité gazeuse du bois dans la direction longitudinale

L : longueur de l'échantillon ($L = L_1 + L_2$)

C : paramètre commun qui va être divisé et disparaître dans l'Equation I- 64

Remplaçant l'Equation I- 64 dans l'Equation I- 63, on obtient :

$$\frac{L}{K_L} = \frac{L_1}{K_{L1}} + \frac{L_2}{K_{L2}}$$ *Equation I- 65*

Avec L_1 : longueur accumulée des trachéides

L_2 : longueur accumulée des ponctuations

K_{L1} : perméabilité gazeuse des trachéides

K_{L2} : perméabilité gazeuse des ponctuations

La longueur des ponctuations étant très courte ($\approx 0{,}1\ \mu m$), Petty considère que la longueur accumulée des trachéides est égale à la longueur de l'échantillon, soit : $L_1 \approx L$.

Après les simplifications, l'Equation I- 65 se simplifie :

$$\frac{1}{K_L} = \frac{1}{K_{L1}} + \frac{L_2}{K_{L2}L}$$ *Equation I- 66*

Dans le modèle de Petty, la perméabilité apparente est évaluée par l'équation de Klinkenberg, soit :

$$K_{L1} = Ac + \frac{l}{\bar{P}}$$ *Equation I- 67*

$$K_{L2} = Bc + \frac{m}{\bar{P}}$$ *Equation I- 68*

avec l, m :pentes de l'équation de Klinkenberg

Ac, Bc : constantes dans l'équation de Klinkenberg

Remplaçant l'Equation I- 67 et l'Equation I- 68 dans l'Equation I- 66, on obtient pour la perméabilité :

$$K_L = \frac{(Ac + \frac{l}{\bar{P}})(Bc + \frac{m}{\bar{P}})}{\frac{l+m}{\bar{P}} + Ac + Bc}$$ *Equation I- 69*

Petty (1970) a utilisé ce modèle pour caractériser l'épicéa de Sitka, il a identifié 250 ponctuations par trachéide avec un rayon de 0,14 µm.

4.5.4. Modèle de Comstock

Le transport des fluides dans les résineux passe dans les trachéides interconnectées par les ponctuations aréolées. La taille de ponctuations est souvent petite et leur résistance hydraulique est beaucoup plus grande que celle des trachéides. Donc Comstock (1970) a supposé que les ponctuations expliquent toute la résistance hydraulique. Seuls le nombre actif (le nombre de ponctuations ouvertes donc non-aspirées) et la taille de ponctuation restent à déterminer. Pour identifier ces deux paramètres, il a proposé certaines simplifications de la morphologie du bois :

1) La microstructure du bois est homogène, c'est-à-dire que les différences entre bois de printemps et bois d'été sont ignorées.
2) La migration du fluide se fait via le système trachéide-ponctuation pour le résineux et vaisseau-ponctuation pour le feuillu.
3) Les cellules possèdent une section carrée dans le plan transversal.
4) Les ponctuations ont la même taille et elles se répartissent uniformément sur la paroi radiale de cellule.

Considérant que les ponctuations contribuent à la résistance principale au transport des particules fluides, la perméabilité intrinsèque K peut donc s'écrire :

$$K = C\frac{N_p}{N_s} \qquad \textit{Equation I- 70}$$

avec C : constante proportionnelle à la perméabilité

N_p : nombre de ponctuations en parallèle par unité de surface

N_s : nombre de cellules en série

En utilisant cette expression, le ratio ϕ entre perméabilité longitudinale K_L et transversale K_T prend la forme suivante :

$$\phi = \frac{N_{PL} \cdot N_{ST}}{N_{SL} \cdot N_{PT}} \qquad \textit{Equation I- 71}$$

avec N_{PL} : nombre de ponctuations en parallèle par unité de surface en longitudinal

N_{SL} : nombre de cellules en série en longitudinal

N_{PT} : nombre de ponctuations en parallèle par unité de surface en tangentiel

N_{ST} : nombre de cellules en série en tangentiel

En considérant différentes hypothèses sur la morphologie du bois, Comstock (1970) a proposé deux modèles :

- Modèle I :

Ce modèle (Figure I- 17) suppose que :

1) Les trachéides ou les vaisseaux possèdent des tubes de section carrée avec les extrémités non perforées.
2) Les ponctuations sont distribuées uniformément sur les parois radiales des trachéides.
3) Les trachéides se chevauchent sur la moitié de leur longueur.

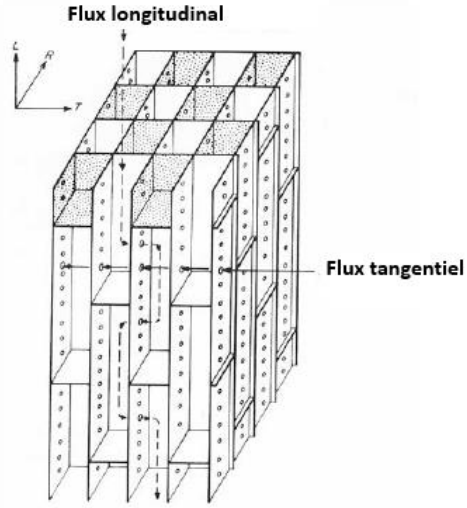

Figure I- 17. Schéma du modèle I (Comstock 1970).

Pour chaque trachéide, il y a n_t pores au total donc $n_t/4$ pores effectifs par trachéide. La longueur de trachéide est notée f et la largeur de trachéide est notée w.

Pour le flux longitudinal, N_{PL} et N_{SL} deviennent alors :

$$N_{PL} = \frac{n_t}{4w^2} \qquad \textit{Equation I- 72}$$

$$N_{SL} = \frac{2}{f} \qquad \textit{Equation I- 73}$$

Pour le flux tangentiel, N_{PT} et N_{ST} prennent les valeurs suivantes :

$$N_{PT} = \frac{n_t}{2fw} \qquad \textit{Equation I- 74}$$

$$N_{ST} = \frac{1}{w} \qquad \textit{Equation I- 75}$$

Le ratio ϕ est ainsi donné par l'expression suivante :

$$\phi = \frac{f^2}{4w^2} \qquad \textit{Equation I- 76}$$

Généralement le ratio entre longueur et largeur d'une trachéide f/w est de l'ordre de 100 donc le rapport d'anisotropie est de l'ordre de 2500 pour le modèle I.

➢ Modèle II :

Ce modèle (Figure I- 18) suppose que :

1) Les trachéides ont des extrémités fuselées qui se chevauchent sur leurs surfaces radiales.
2) Les ponctuations n'existent que sur les surfaces fuselées et sont uniformément distribuées.

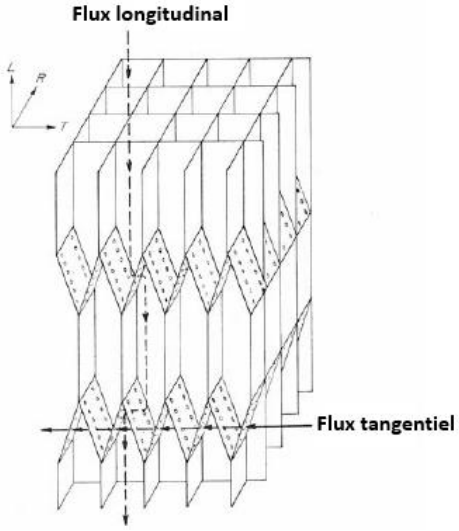

Figure I- 18. Schéma du modèle II (Comstock 1970).

Pour chaque trachéide, il y a n_t pores au total donc $n_t/2$ pores effectifs par trachéide. La longueur de trachéide est notée f et la largeur de trachéide est notée w.

Pour le flux longitudinal, N_{PL} et N_{SL} devient alors :

$$N_{PL} = \frac{n_t}{2w^2} \qquad \textit{Equation I- 77}$$

$$N_{SL} = \frac{1}{f(1-\alpha)} \qquad \textit{Equation I- 78}$$

$$N_{PT} = \frac{n_t}{4wf(1-\alpha)} \qquad \textit{Equation I- 79}$$

$$N_{ST} = \frac{2}{w} \qquad \textit{Equation I- 80}$$

avec α :ratio de la longueur de l'extrémité fuselée par rapport à la longueur totale de trachéide.

Le ratio ϕ devient alors :

$$\phi = \frac{4[f(1-\alpha)]^2}{w^2} \qquad \textit{Equation I- 81}$$

Le ratio α peut varie de 0 à 0,5. Donc le rapport d'anisotropie peut varie de 10 000 à 40 000 pour un rapport f/w égal à 100. Comstock (1970) a proposé une plage plus raisonnable qui suppose que α varie de 0,25 à 0,5, correspondant un rapport d'anisotropie compris entre 22 500 et 10 000.

5. Conclusion

Ce chapitre bibliographique a donc présenté l'anatomie du matériau bois, les aspects théoriques du phénomène de perméabilité au gaz dans ce matériau, les principes de mesure utilisés dans la littérature pour la déterminer, les paramètres pouvant l'influencer ainsi que les modèles couramment utilisés pour sa description.

Il en ressort que certains éléments anatomiques participant au transfert de gaz comme les ponctuations, orifices reliant trachéides ou vaisseaux entre eux, sont difficilement observables par les méthodes d'imagerie classiques de par leur petite taille. La littérature montre qu'une solution alternative consiste à obtenir ces informations à partir de l'analyse de la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression.

De nombreux dispositifs ont été développés pour mesurer la perméabilité apparente, la plupart d'entre eux la détermine en mesurant le débit traversant l'échantillon après avoir imposé une différence de pression. La multiplication des mesures (pression et débit) augmente le risque d'erreurs expérimentales. Afin d'éviter ce risque un dispositif original a été développé au cours de ce travail. Il est précisément décrit dans le chapitre suivant.

II. Matériels et Méthodes

1. Introduction

Les matériels et méthodes utilisés pour mener à bien le travail de doctorat sont présentés en détails dans ce chapitre. Les résultats du présent travail ayant été valorisés sous forme de publications que l'on retrouve dans les chapitres 3 et 4 il semblait indispensable de détailler la méthodologie pour une bonne compréhension du manuscrit par le lecteur. La nature même d'une publication ne permettant pas d'aller jusqu'à un tel niveau de détails.

Ainsi après avoir détaillé l'échantillonnage (matériaux étudiés, préparation des échantillons…), le dispositif expérimental original développé au cours du doctorat est présenté en détail. Le dispositif, le protocole de mesure ainsi que les précautions à prendre pour la réalisation de mesures rigoureuses y sont particulièrement détaillés. Des aspects théoriques du sujet sont également développés : calcul de la perméabilité en régime isotherme et en régime réel et description des modèles théoriques du bois.

2. Echantillonnage

La connaissance rigoureuse de la perméabilité à l'air et de la taille des pores de matériaux sont particulièrement déterminants dans de nombreux secteurs industriels parmi lesquels nous pouvons cités celui de la construction et de la filtration membranaire. Pour cela le travail présenté ici s'est orienté sur l'étude de différents matériaux de construction, biosourcés (bois, panneaux de fibres de bois) ou non (béton cellulaire), ainsi que sur un type de membrane classiquement utilisée dans les processus de filtration membranaire. Les caractéristiques de ces échantillons (dimensions, masse volumique basale) sont données dans le Tableau II- 1.

2.1. Le bois

Au cours de cette étude une essence feuillue, le hêtre (*Fagus sylvatica*) et une essence résineuse, l'épicéa (*Picea abies*) ont été étudiées (Figure II- 2). Les échantillons de hêtre ont été usinés à partir d'un arbre issu de la forêt de Rambouillet (région parisienne, France), ceux d'épicéa à partir d'un arbre provenant de la forêt du Risoux (région de Bourgogne Franche-Comté, France). Afin d'évaluer le caractère anisotropie de la perméabilité du bois, les échantillons ont été usinés dans les directions longitudinale (L), radiale (R) et tangentielle (T) dans la zone du duramen du tronc d'arbre (Figure II-1).

Les planches dont sont issus les échantillons ont d'abord été rabotés à l'épaisseur désirée. Les échantillons sont ensuite usinés à l'aide d'une scie cloche montée sur une perceuse à colonne selon le diamètre souhaité.

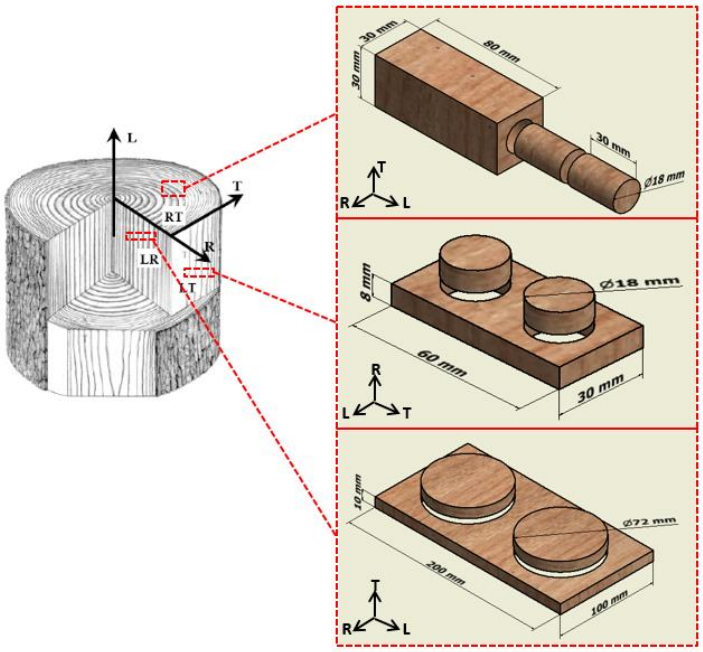

Figure II- 1. Echantillonnage du bois (épicéa et hêtre) dans les directions longitudinales (L), radiale (R) et tangentielle (T).

Un soin particulier a été apporté à la préparation des faces latérales de l'échantillon afin d'éviter tout flux latéral. Ces dernières ont d'abord été polies avant d'être enduite d'une couche de résine époxy (*Struers, Epofix Kit*). La résine est constituée de la résine elle-même et d'un durcisseur qu'il faut mélanger dans les proportions de 15 ml de résine pour 2 ml de durcisseur. Après une heure au repos, lorsque le mélange est plus visqueux, donc moins pénétrant, il est appliqué sur les faces des échantillons. Les échantillons sont régulièrement tournés sur eux même afin que la résine se dépose de façon homogène sur toute la face.

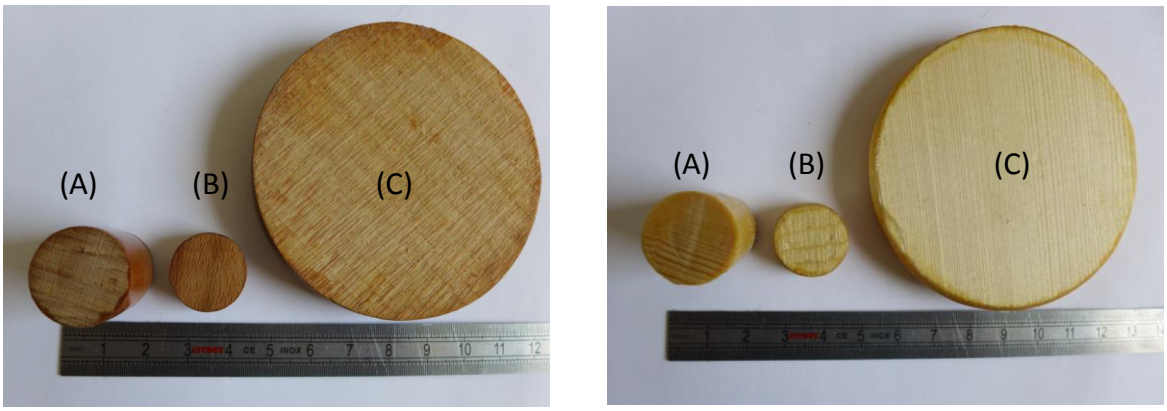

Figure II- 2. Echantillons de hêtre (à gauche) et épicéa (à droite). A) direction longitudinale, B) direction radiale et C) direction tangentielle.

2.2. Les panneaux de fibres de bois

Les échantillons de panneaux de fibres de bois sont de marque *Pavatex*. Deux types de panneaux de densité différente ont été caractérisés au cours de cette étude (Tableau II- 1) : des panneaux isolants, *Low Density Fibreboard* (LDF), et des panneaux de fibres moyennes densité, *Medium Density*

Fibreboard (MDF). Les échantillons ont été usinés au diamètre souhaité directement à partir de ces panneaux grâce à une scie cloche.

Là encore il est important de rendre étanche la face latérale afin d'éviter les fuites latérales. Malheureusement la porosité élevée de ces matériaux contribue à une imprégnation de plusieurs millimètres de résine qui conduit, après séchage, à une zone circulaire importante complètement étanche au flux de gaz. Afin d'éviter cela et garantir des mesures rigoureuses sur une géométrie maitrisée, l'étanchéité latérale a été réalisée de manière légèrement différente. Une bande de feuille d'aluminium, de largeur égale à l'épaisseur de l'échantillon et de longueur équivalente à son périmètre, a été enduite de résine sur l'une de ses faces et ensuite appliquée autour de l'échantillon, face enduite en contact de celui-ci. Cela évite la pénétration de la résine dans l'échantillon. Après séchage, une nouvelle couche de résine a été appliquée sur la face externe.

2.3. Le béton cellulaire

Les échantillons proviennent de carreaux de béton cellulaire (L.600×l.250×Ep.70mm) de marque *Axton* (Figure II- 3). Des blocs parallélépipédiques (L.60×l.30×Ep.25mm) ont été usinés à partir de ces carreaux à l'aide d'une scie à ruban. Les échantillons ont ensuite été usinés à l'aide d'une scie cloche de 72 mm de diamètre. Les faces de l'échantillon ont été soigneusement dépoussiérées à l'aide d'une bombe d'air sec après découpe. Le béton cellulaire étant lui aussi un matériau très poreux, un protocole identique à celui utilisé pour les panneaux de fibres de bois a été réalisé pour l'étanchéité de la face latérale.

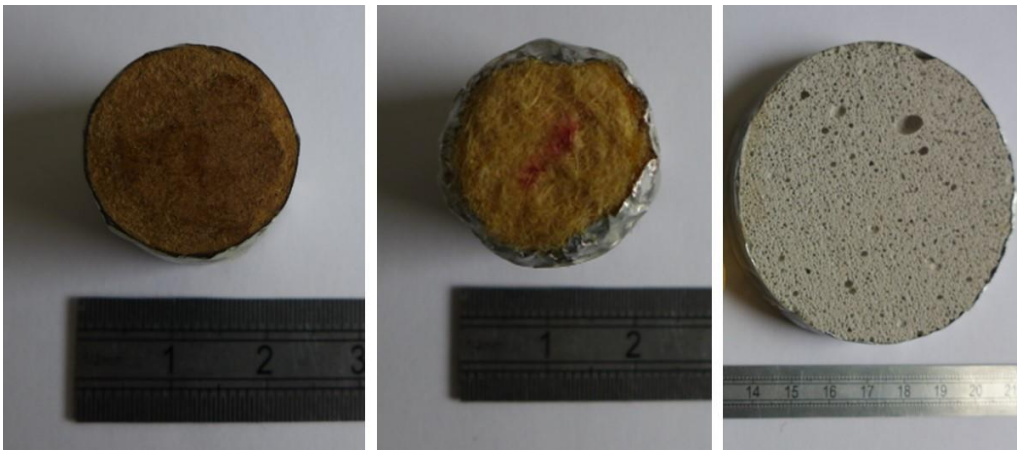

Figure II- 3. Echantillons de MDF (à gauche) de LDF (au milieu) et de béton cellulaire (à droite).

2.4. La membrane

Des membranes d'ultrafiltration polycarbonate, du type track-etched, modèle NUCLPR 47 mm 10.0 µm (Whatman Nuclepore), ont également été étudiées au cours de ce travail (Figure II- 4). Il s'agit de membranes symétriques à porosité contrôlée. Le diamètre de pore est de 10 µm, la densité de pore de 1×10^5 pores cm^{-2} ($\pm$15%) et leur épaisseur de 10 µm ($\pm$10%).

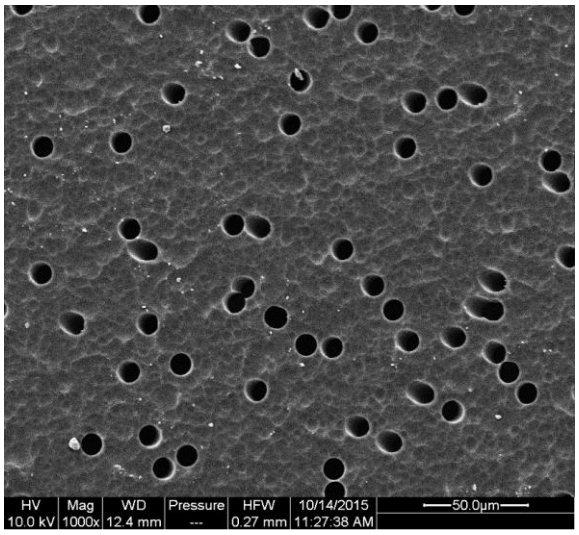

Figure II- 4. Micrographie d'une membrane track-etched (NUCLPR 47 mm 10.0 µm) obtenue par microscopie électronique à balayage (MEB, FEI Quanta 200).

Tableau II- 1. Caractéristiques des échantillons.

		Masse volumique basale (kg.m^{-3})	Diamètre (mm)	Epaisseur (mm)
Epicéa	R	360	18	8
	T		72	10
	L		18	30
Hêtre	R	560	18	8
	T		72	10
	L		18	30
MDF		737	18	15
LDF		156	18	30
Béton cellulaire		559	72	10
Membrane		-	47	0,01

3. Dispositif expérimental de mesure de la perméabilité apparente

Le dispositif expérimental original (Figure II- 5) développé au cours de ce travail permet de déterminer la perméabilité apparente de milieux poreux dans une large gamme de perméabilité gazeuse (10^{-10} à 10^{-18} m²) et de pression moyenne (de 1 bar jusqu'à environ 30 – 40 mbar) à température constante. La variation de la perméabilité apparente en fonction de la pression moyenne combinée à des modèles de réseaux poreux définis permet l'identification de paramètres structuraux du matériau comme la taille et le nombre de pores par exemple.

Le dispositif expérimental est schématisé en Figure II- 13. Le principe général de la mesure consiste à imposer une différence de pression de part et d'autre de l'échantillon et à suivre l'évolution des pressions dans les volumes lorsque le gaz passe à travers l'échantillon. La perméabilité apparente découle directement de la loi de Darcy et des mesures des pressions P1 et P2 au cours du temps.

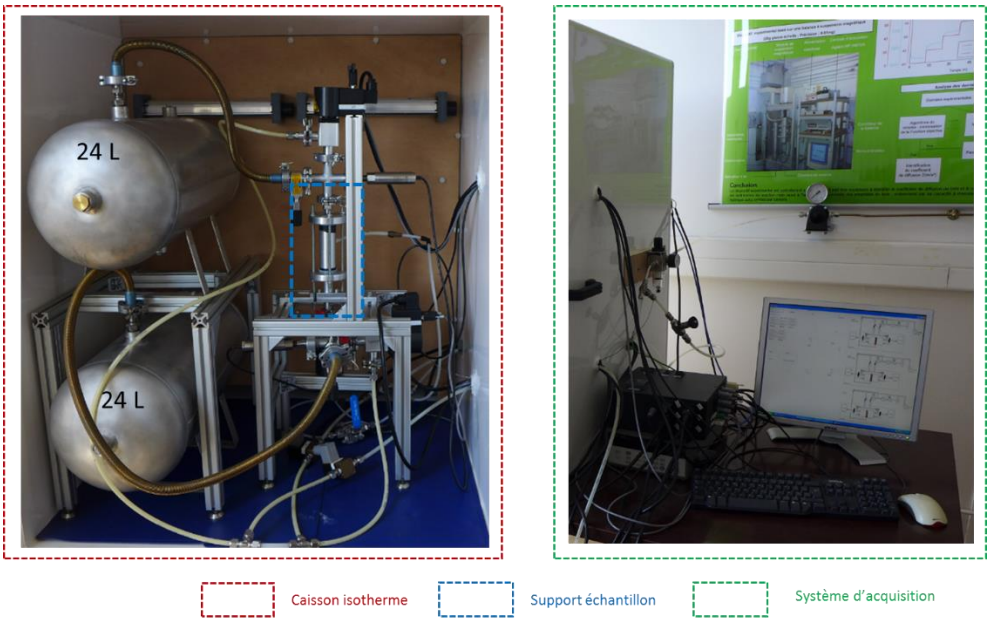

Figure II- 5. Dispositif expérimental : système de mesure (à gauche) et chaine d'acquisition (à droite).

Le dispositif est constitué de deux volumes de gaz identiques (0,2 ou 24 L) connectés au support d'échantillon, de capteurs de pression ainsi qu'aux différentes vannes et à la pompe à vide. L'ensemble est placé dans un caisson hermétique régulé en température et alimenté en air via le réseau d'air comprimé du laboratoire. L'air comprimé est détendu grâce à un détendeur (0 – 15 bar) muni d'un déshuileur afin d'alimenter le dispositif avec un air purifié à une pression de 2 bar. Il servira à mettre une surpression dans le support échantillon afin d'éviter les fuites latérales et à alimenter le dispositif pour l'essai. Dans ce cas, un second détendeur permet de régler plus finement la pression voulue entre 0 et 2 bar. Au cours de ce travail, seul l'air a été utilisé mais il est également possible d'alimenter le système par des bouteilles de gaz (hélium ou azote par exemple).

3.1. Le support échantillon, étanche et adapté aux matériaux étudiés

Le support échantillon développé pour ce travail s'inspire du système « ALU-CHA » développé par Perré et Agoua (2002). Sur ce modèle, deux supports échantillon ont été réalisés : l'un, plus long et d'un diamètre plus petit pour les échantillons perméables appelé support « 18D » et l'autre, moins long et plus large en diamètre pour les échantillons moins perméables appelé support « 72D » (Figure II- 6). Dans tous les cas, il permet une mesure rigoureuse de la perméabilité en évitant toute fuite de gaz par les faces latérales en dépit des changements de taille de l'échantillon (retrait-gonflement) et des défauts de forme géométrique.

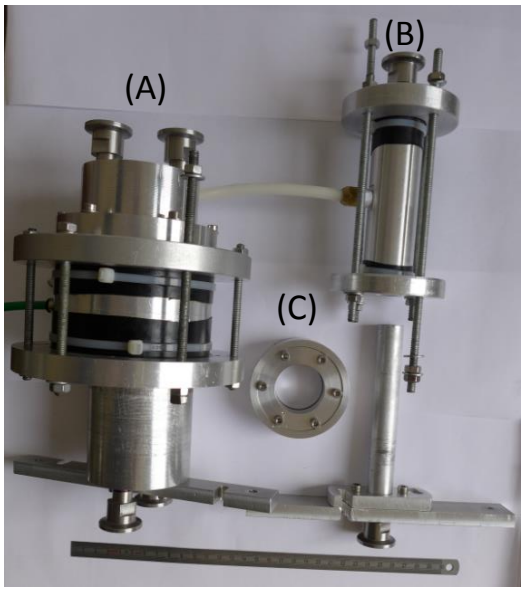

Figure II- 6. Les supports échantillon "72D" (A), "18D"(B) et l'adaptateur pour membrane C).

Le support échantillon est constitué d'un corps cylindrique en duralumin (F) qui reçoit par l'intérieur un morceau de chambre à air (E), d'un diamètre légèrement inférieur à celui du cylindre, débordant de celui-ci aux deux bases. Ces deux parties débordantes sont solidement tendues, repliées vers l'extérieur et attachées par des colliers (G) autour du cylindre. Le corps cylindrique est percé d'un trou sur la face latérale (H) relié au circuit « vide-pression » du dispositif. En réalisant le vide, cela permet de plaquer la chambre à air contre la paroi interne du cylindre et de positionner l'échantillon (L) et les deux chambres (A). Lorsque le positionnement est correct, une surpression est appliquée afin de plaquer la chambre à air contre l'échantillon et les deux chambres empêchant ainsi toute fuite latérale tout en autorisant les légères variations ou imperfections dimensionnelles de l'échantillon.

Les deux chambres (A) sont également cylindriques et réalisées en duralumin (Figure II- 7). La partie en contact avec l'échantillon est taillée en biseau pour que l'air arrivant ou s'échappant de l'échantillon se répartisse sur toute sa surface sans résistance. Deux tiges filetées (D) permettent de les assembler l'une à l'autre et d'assurer un parfait contact entre chacune d'elle et l'échantillon. Pour les chambres de plus grand diamètre, deux trous sont percés sur les bases inférieures : le premier sert à conduire ou évacuer l'air tandis que le second est relié au capteur de pression. En revanche, pour les chambres de plus petit diamètre, un seul trou est percé sur les bases inférieures. Il permet la connexion d'un raccord lui-même connecté au capteur de pression d'une part et à l'arrivée/sortie de gaz d'autre part.

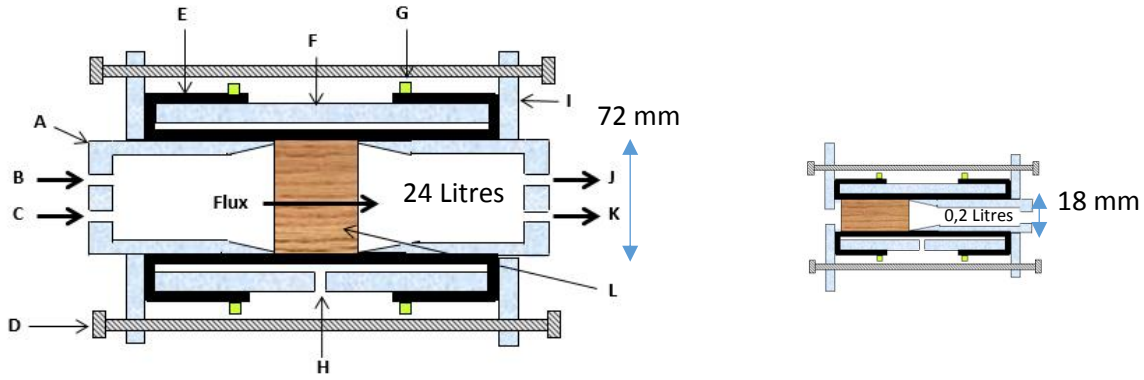

Figure II- 7. Coupe schématiques des supports échantillon « 72D » à gauche et « 18D » à droite (remarque : les dimensions et proportions dans les schémas ne respectent pas strictement aux dimensions réelles).

La Figure II- 8 présente l'adaptateur qui a été développé pour tester les membranes dans le support échantillon de grand diamètre décrit précédemment. La membrane (A) est positionnée entre deux joints toriques (B) de 37 mm de diamètre intérieur et 47 mm de diamètre extérieur. La partie mâle de l'adaptateur (C) est insérée dans la partie femelle (D). Le serrage (E) de l'ensemble permet un contact parfait entre les joints toriques, la membrane et l'adaptateur évitant ainsi les fuites latérales.

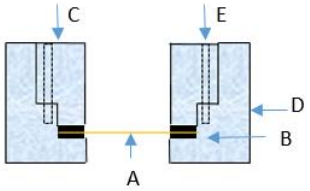

Figure II- 8. Coupe schématique de l'adaptateur à membrane.

3.2. Mesure de la pression

La mesure de la pression est un élément clef à la réalisation des essais. Les capteurs de pression sont placés de part et d'autre du support échantillon. Il s'agit de capteurs de haute sensibilité *RPS/DPS 8000* de marque *GE Druck* qui fonctionne selon la technologie TERPS (Trench Etched Resonant Sensor) et mesurent des variations de pression de gaz allant de 0 à 2000 mbar à une précision meilleure que 0,01% (Figure II- 9).

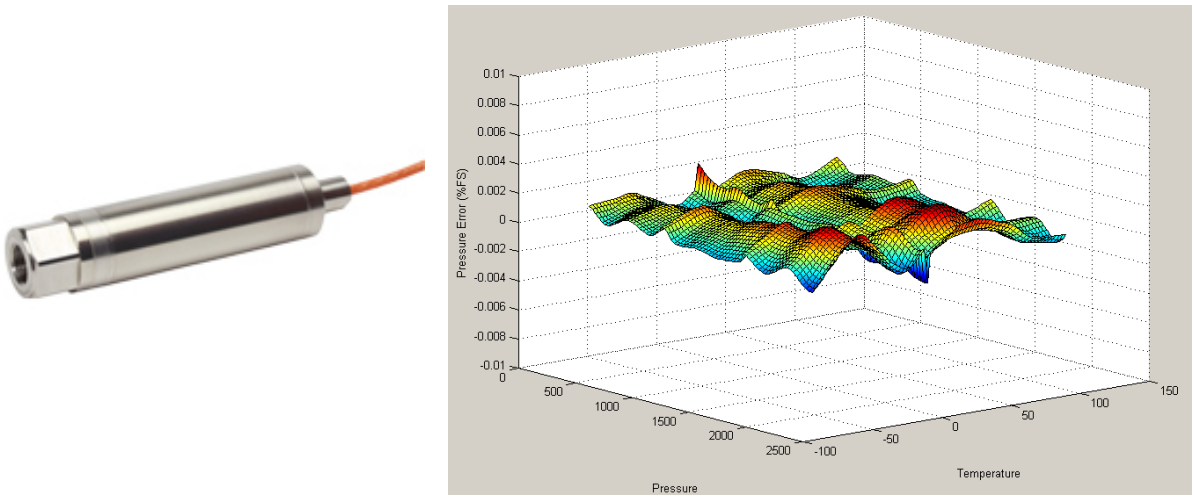

Figure II- 9. Capteur de pression RPS/DPS 8000, GE Druck (à gauche) et leur précision en fonction de la température et pression (données constructeur) (à droite).

Afin de s'assurer du bon fonctionnement des capteurs, un essai a été réalisé sans échantillon. La pression a été progressivement augmentée dans le dispositif. La Figure II- 10 montre les pressions enregistrées par chacun des capteurs et confirme qu'ils réagissent de manière identique. Une différence moyenne des pressions de 0,009 mbar en absolu entre ces deux capteurs de pression a été obtenue pendant 6 heures d'enregistrement.

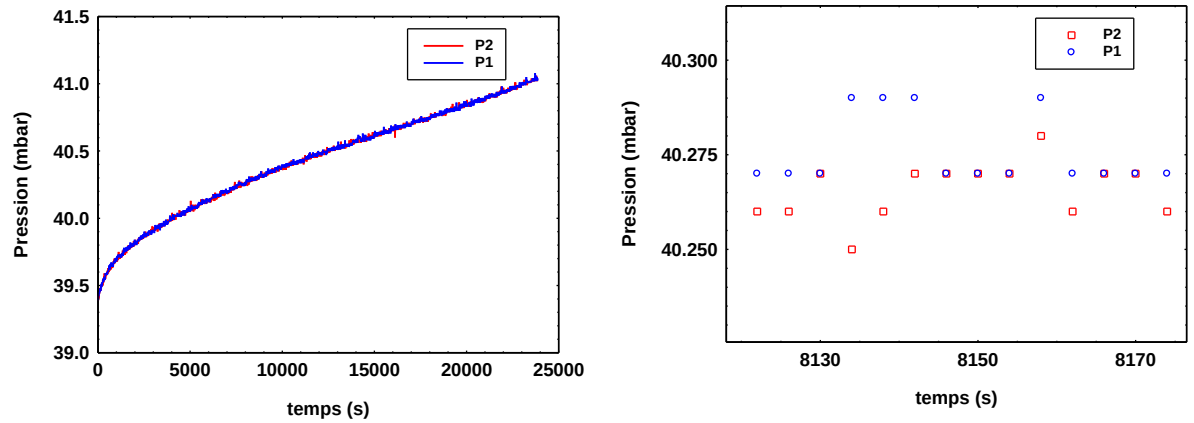

Figure II- 10. Evolution des pressions P1 et P2 enregistrées par les capteurs : évolution des pressions P1 et P2 pendant 6 heures d'enregistrement (à gauche) et un zoom sur l'évolution des pressions pendant un temps court pour montrer la différence de pression (à droite).

La fiabilité des résultats étant basée sur la précision des mesures de variations des pressions, tout le circuit de mesure a été réalisé avec une technologie de vide primaire afin d'isoler complètement le système de la pression atmosphérique. Il est en effet important de s'assurer que la variation de pression mesurée n'est pas liée à une fuite éventuelle et ce, surtout pour les essais à faible pression moyenne.

Les électrovannes V1, V2 et V5 (*VAT, série 26*) représentées sur la Figure II- 13 bénéficient ainsi d'une technologie de vide primaire et permettent un taux de fuite inférieur à 10^{-9} mbar (litre.s)$^{-1}$ pour la plage de pression allant de 10^{-8} mbar à 2 bar en absolue. Les vannes tiroir (*VAT, série 01*) représentées sur cette même figure utilisent le système VATLOCK conçu par VAT et assurent un taux

de fuite inférieur à 10^{-9} mbar (litre.s)$^{-1}$ pour une plage de pression allant de 10^{-7} mbar à 1 bar en absolue.

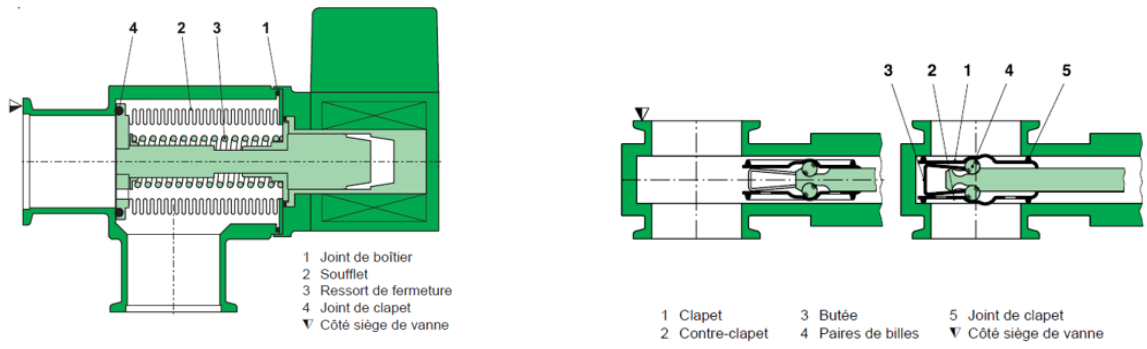

Figure II- 11. Schéma de l'électrovanne (VAT série 26) à gauche et de la vanne tiroir (VAT série 01) à droite.

Des brides « ISO-KF » conçues par VAT sont présentes aux extrémités des éléments et permettent leur raccordement entre eux (vanne, électrovanne, tuyaux, pièces intermédiaires…). Elles sont associées à un anneau de centrage et un anneau de serrage complet pour permettre des connections avec un taux de fuite inférieur à 10^{-9} mbar (litre.s)$^{-1}$.

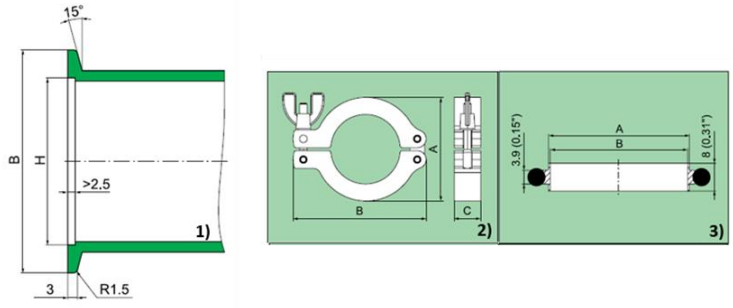

Figure II- 12. Bride ISO-KF. Les dimensions correspondantes sont : DN (diamètre intérieur du tube) =16 mm, B=30mm et H=17,20 mm ; 2) Anneau de serrage complet (DN=16 mm, A=45 mm, B=61 mm et C= 16 mm) ; 3) Anneau de centrage (DN=16 mm, A=17 mm et B=16 mm).

Les réservoirs sont reliés à ce système de vide par des éléments mixtes NPT/bride ISO-KF. La liaison au réservoir par filetage NPT est rendue étanche par le dépôt d'une résine d'étanchéité aux raccords (*LOCTITE 577*).

3.3. La régulation thermique

Afin de s'affranchir de l'effet « température » sur la mesure de pression, l'ensemble du dispositif est placé dans un caisson régulé en température. Le caisson (*Froid loisirs équipements, ISO 230*) est réalisé en panneaux sandwichs d'épaisseur 65 mm avec deux faces stratifiées en polyester blanc. Il est armé d'une mousse polyuréthane présentant un coefficient thermique de 0.42 w/m².K. La

régulation de la température, de type PID (Proportionnel, Intégral, Dérivée), se fait via des résistances chauffantes positionnées sur des dissipateurs thermiques d'une puissance de 10W (*Pfannenberg, FLH 010-M*), deux ventilateurs tangentiels (*ebmpapst, QG 030-303/12*) et une sonde de température PT 100.

3.4. Le protocole de mesure

La partie qui suit montre le protocole à suivre pour réaliser les mesures. Il est composé de différentes étapes qu'il convient de suivre dans l'ordre indiqué. Le schéma général du dispositif, tel que proposé en Figure II- 13, permettra au lecteur de suivre ces étapes.

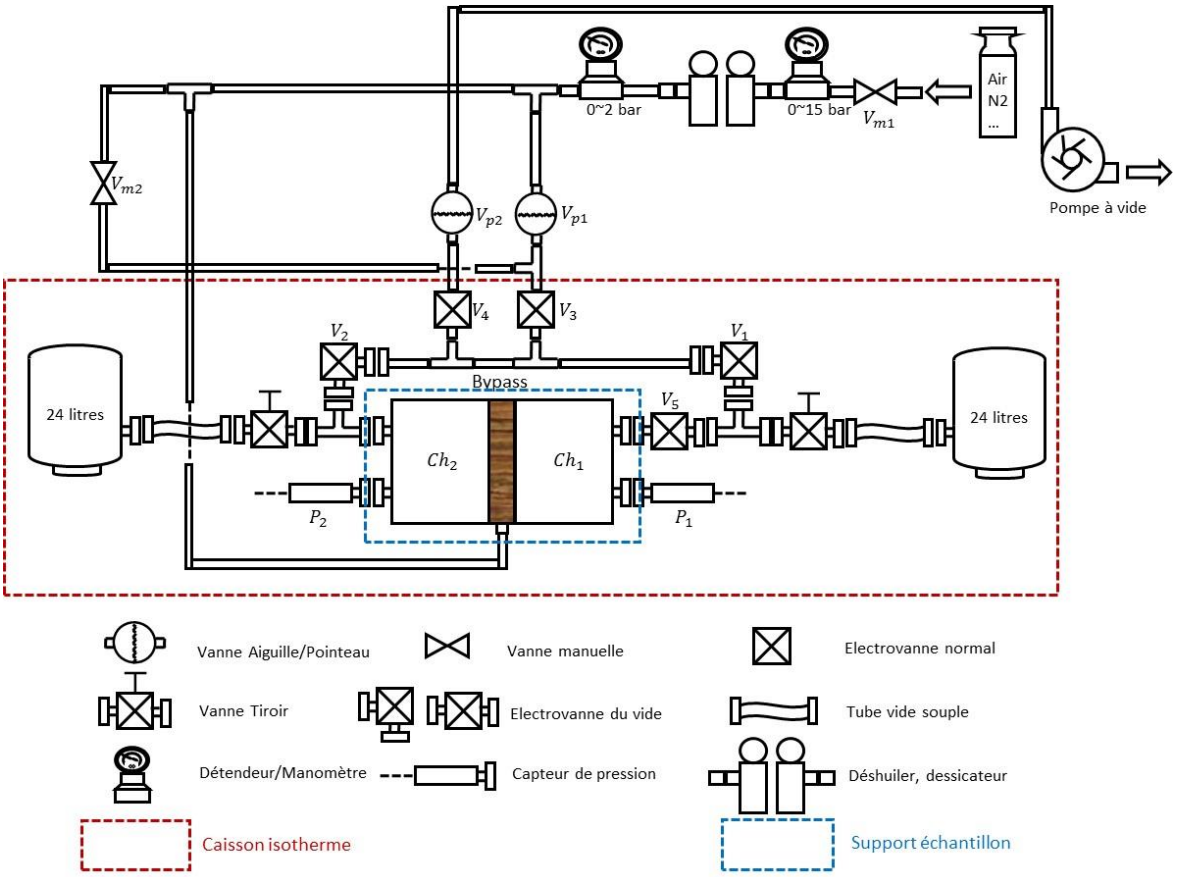

Figure II- 13. Schéma du dispositif expérimental

- Mise en place de l'échantillon

La vanne manuelle Vm2 ainsi que les vannes Vp2, V3 et V4 sont ouvertes, la pompe à vide est en marche et le support échantillon connecté (via « H », Figure II- 5). L'air présent entre la chambre en caoutchouc et le corps cylindrique est chassé ce qui plaque la chambre contre le corps cylindrique. L'échantillon est préalablement enduit de graisse à vide sur sa face latérale et inséré dans le support. La vanne manuelle est ensuite fermée et la vanne d'air comprimé du réseau (Vm2) ouverte. De l'air est alors injecté à une pression de 2 bar qui créé une contre-pression et permet à la chambre à air de se plaquer contre l'échantillon.

- Purge de l'air dans le système

Toutes les vannes (sauf Vp1, V3 et la vanne manuelle Vm2) sont ouvertes, la pompe à vide allumée. La pression diminue alors dans l'ensemble du système. La vitesse de chute de pression est réglée par la vanne pointeau Vp2. Lorsque le vide est atteint, les vannes sont fermées et la pompe à vide est arrêtée. La pression initiale dans le système doit rester inférieure à 20 mbar pour la plage de mesure entre 20 et 1000 mbar. Notons que lorsque l'on change de gaz entre deux essais, le système est rempli avec le nouveau gaz puis re-purgé et à nouveau rempli. Cela permet d'être certain que seul le nouveau gaz est présent dans le système.

- Mesure de la relaxation de pression

Les électrovannes V1, V2 et V5 ainsi que l'électrovanne V3 sont ouvertes. Le système est alors alimenté en gaz grâce à la vanne pointeau Vp1 qui sert à réguler finement la pression. Lorsque la pression P2 souhaitée est atteinte, la vanne V2 est fermée et l'augmentation de pression se poursuit dans la chambre 1 jusqu'à l'obtention de la différence de pression souhaitée. La vanne V1 est alors fermée et le gaz se relaxe à travers l'échantillon, de la chambre 1 vers la chambre 2. Les variations de pressions P1 et P2 ainsi que la température sont enregistrées au cours du temps. Cette étape est réalisée à plusieurs reprises à différentes valeurs de pression moyenne (entre 20 et 1000 mbar). Notons que pour des échantillons très perméables, il faut utiliser les volumes de 24L et donc ouvrir les deux vannes tiroir. Après chaque palier en pression, l'électrovanne V5 est fermée jusqu'à stabilisation du régime thermique : la phase de relaxation débute à l'ouverture de la vanne V5.

- Arrêt de la mesure

Toutes les électrovannes de vide ainsi que l'électrovanne V4 et la vanne manuelle sont ouvertes. La vanne pointeau Vp2 est alors progressivement ouverte, elle laisse passer l'air qui permet au système de s'équilibrer avec la pression atmosphérique. L'échantillon est dégagé du support en suivant un protocole similaire à celui décrit dans le paragraphe a) de cette même partie. A la fin de l'essai toutes les vannes sont fermées.

4. Calcul de la perméabilité

4.1. En régime isotherme

Conformément aux développements du chapitre 1, la perméabilité apparente gazeuse en régime isotherme est calculée par la formule suivante (Equation 11, chapitre 3) :

$$K_{app} = \frac{\mu_g V \ell}{A_{échantillon}} \frac{1}{2\bar{P}} \frac{d(\ln(P_1 - P_2))}{dt} \qquad \textit{Equation II- 1}$$

La Figure II- 14 montre un exemple de suivi de relaxation, la pression moyenne $\bar{P}$ reste constante ($\bar{P} = 298{,}59 \pm 0{,}92\ mbar$) au cours du temps car les volumes de deux réservoirs sont identiques. Ceci est valable dans le cas où la différence de pression initiale est très faible devant la pression moyenne ($P_1 - P_2 \ll \bar{P}/10$). La variation temporelle du logarithme de la différence de pression (terme de droite d'Equation II- 1) doit avoir une forme linéaire car la détente de la pression est une fonction exponentielle. La pente de cette droite est déterminée par régression linéaire. La Figure II-

14 confirme que l'évolution temporelle du terme $\ln(P_1 - P_2)$ est bien linéaire. Le zoom aux temps longs de cette courbe devient un peu bruité vers la fin de l'expérience, alors lorsque la différence de la pression à travers l'échantillon $P_1 - P_2$ devient petite ($P_1 - P_2 = 6{,}14\ mbar$). Mais même dans cette zone, la pente peut être calculée avec une bonne précision par régression linéaire, ce qui confirme l'excellente qualité des capteurs de pression.

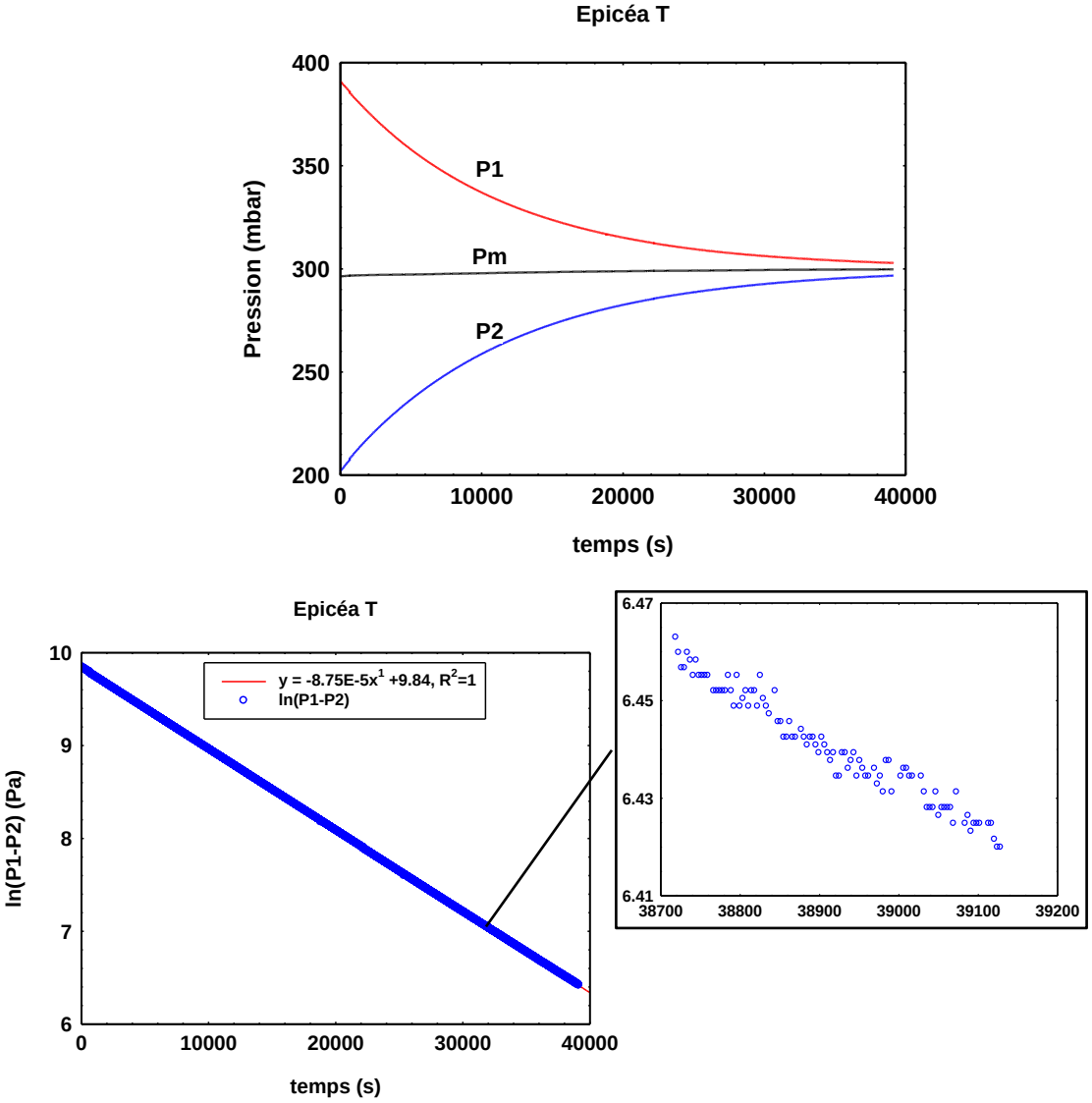

Figure II- 14. Les relaxations des pressions P_1 et P_2 en fonction du temps pour un échantillon de l'épicéa dans la direction tangentielle (en haut), le logarithme de l'évolution de leur différence (en bas à gauche) en fonction du temps sur l'ensemble des données et le zoom durant les derniers instants sous une faible différence de pression (en bas à droite).

4.2. En régime réel

Sachant que le régulateur PID assure une régulation de la température constante dans le caisson thermique, on a supposé à priori toutes les mesures s'effectuées dans les conditions isothermes. Cette hypothèse est valable pour des échantillons peu perméables (de l'ordre de 10^{-14} à 10^{-20} m²), car dans ce cas le temps de relaxation de la pression est bien supérieur au temps caractéristique du régime thermique (le temps lié au transfert de la chaleur entre l'extérieur et l'intérieur de la paroi de

la chambre du gaz et à la relaxation du gaz dans la chambre du gaz sont négligeables devant le temps de relaxation de la pression). Par contre, dans le cas où l'échantillon est très perméable, par exemple le bois dans la direction longitudinale, le panneau de fibres, la membrane poreuse, le temps de relaxation du gaz à travers l'échantillon (de l'ordre d'une à une dizaine de secondes) devient comparable ou plus grand que le temps de mise en régime thermique. Dans ce cas, on est plutôt dans le régime non-isotherme voire le régime adiabatique et le calcul de la perméabilité apparente en régime isotherme n'est plus valable. Partant sur le problème de régime du gaz, afin de valider le calcul de la perméabilité dans le cas le plus général où la température dans la chambre du gaz est une variable en fonction du temps, on propose un nouveau modèle pour déterminer la perméabilité gazeuse. Ce modèle repose sur les bilans entropiques du gaz parfait dans les deux chambres et prend en compte de l'effet thermique sur le comportement du gaz dans le régime réel. Pour voir la différence du calcul théorique en régime isotherme, nous avons aussi traités les deux cas extrêmes du régime réel par notre modèle numérique : le régime isotherme et le régime adiabatique.

- Avant de faire une estimation dans le régime réel, plusieurs hypothèses ont été effectuées : le gaz est considéré comme un gaz parfait.
- Le temps de l'écoulement du gaz est suffisamment lent devant le temps de la relaxation du gaz pour qu'on puisse considérer que les pressions P_1, P_2 et les températures T_1, T_2 sont uniformes dans les deux chambres.
- Le régime stationnaire est admis pour la perméation du gaz à travers l'échantillon.
- La température dans le caisson thermique régulée par le régulateur PID est considérée comme constante pendant l'essai.

D'après la définition de l'énergie interne U et la valeur de la capacité thermique à un volume constant C_V pour un gaz idéal ($C_V = nRT/(\gamma - 1)$), la variation d'entropie dS d'un gaz idéal peut s'exprimer en fonction du couple de la température et du volume (dT, dV) :

$$dS = \frac{nR}{\gamma - 1}\frac{dT}{T} + nR\frac{dV}{V} \qquad \textit{Equation II- 2}$$

Dans l'Equation II- 2 la variation du volume dV est simplement déterminée par l'équation de Darcy avec la différence de pression $P_1 - P_2$ actuelle. La variation de pression dP est aussi reliée aux variations de volume et de température grâce à la loi du gaz parfait :

$$\frac{dP}{P} + \frac{dV}{V} = \frac{dT}{T} \qquad \textit{Equation II- 3}$$

Enfin, la variation d'entropie dS est calculée par le transfert de la chaleur δQ issue de la paroi intérieure de la chambre du gaz vers le gaz intérieur. Ce flux thermique δQ est obtenu en utilisant le coefficient du transfert thermique du côté intérieur des volumes h_{int} (unité : $W.K^{-1}.m^{-2}$):

$$dS = \frac{\delta Q}{T} = \frac{h_{int}A_{chambre}\left(T_{paroi} - T_g\right)dt}{T} \qquad \textit{Equation II- 4}$$

Gardant à l'esprit que l'échange thermique de la paroi de la chambre du gaz a lieu sur les surfaces intérieure et extérieure, un simple bilan thermique de la paroi du réservoir permet d'obtenir l'évolution de sa température :

$$m_{paroi}C_{p,paroi}dT_{paroi} = A_{chambre}[h_{int}(T_g - T_{paroi}) + h_{ext}(T_{ext} - T_{paroi})]dt \qquad \textit{Equation II- 5}$$

Les équations 2 à 5 ont été résolues numériquement pour calculer l'évolution de la pression et de la température dans les chambres 1 et 2 (Figure II- 15).

- Initialisation des valeurs : P_1, P_2, T_1 et T_2
- Boucle pour $t = 0$ à τ
  - Calcul de dV_1 et dV_2 d'après la loi de Darcy en prenant les valeurs actuelles de P_1 et P_2
  - Calcul de n_1 et n_2 à l'aide de V_1 et V_2 en prenant les valeurs actuelles de P_1, P_2, T_1 et T_2
  - Calcul de dS_1 et dS_2 à l'aide du flux thermique Equation II- 4
  - Substitution des valeurs précédentes dans l'Equation II- 2 pour calculer dT_1 et dT_2
  - Calcul de dP_1 et dP_2 à l'aide de l'Equation II- 3
  - Mise à jour de la température de la paroi T_{paroi} à l'aide de l'Equation II- 5
  - Actualisation des valeurs de P_1, P_2, T_1 et T_2 pour le nombre de moles n_1 et n_2 à l'instant t
  - Mise à jour de T_2 sous forme de mélange de n_2 à T_2 et dn à T_1 entré dans V_2 pendant la durée dt
  - $t = t + dt$
  - Enregistrement des données
- Fin de la boucle

Figure II- 15. Algorithme à simuler le comportement du gaz de notre dispositif expérimental dans le cas réel.

Remarque : ce modèle numérique s'applique à un système fermé (il n'y pas de communication de la matière entre les deux chambres du gaz et l'extérieur : le nombre de moles totale du gaz est conservé). Donc, les nombres de moles n_1 et n_2 sont calculés à l'aide des volumes V_1 et V_2 et les valeurs actuelles des pressions P_1 et P_2 et des températures T_1 et T_2 à chaque instant t. Pendant chaque incrément du temps dt, le débit Q à travers l'échantillon change simplement le volume du système (V devient $V + dV$). Une détente de Joule-Thomson a lieu dans le milieu poreux, donc le gaz entre dans le volume V_2 à la température T_1 (hypothèse du gaz parfait).

Ce modèle numérique est destiné à simuler le comportement du gaz dans en régime réel. Avec de simples modifications, il s'applique aussi aux configurations en régimes isotherme et adiabatique :

- Modèle numérique en régime isotherme : comme la température est constante, l'incrément de la température est simplement mis à zéro : le terme gauche dans l'Equation II- 2 disparaît ($dT = 0$), il ne reste que le terme de droite dans l'expression de l'incrément d'entropie dS ($dS = nRdV/V$).

- Modèle numérique en régime adiabatique : il n'y a pas de changement d'entropie dans le système. L'incrément d'entropie dS dans l'Equation II- 2 est simplement mis à zéro ($dS = 0$).

Prenant la même procédure d'identification que décrite dans la Figure II- 15 on pourra simuler les comportements du notre dispositif expérimental dans les régimes isotherme et adiabatique.

4.3. Détermination des coefficients de transfert thermique h_{int} et h_{ext}

Les simulations numériques en régime réel exigent la connaissance des coefficients de transfert thermique. Il faut donc déterminer les valeurs de h_{int} (coefficient du transfert thermique entre la paroi interne de la chambre du gaz et le gaz dans la chambre) et de h_{ext} (coefficient du transfert

thermique entre la paroi externe de la chambre du gaz et le gaz dans le caisson thermique). En raison de l'inertie thermique de la paroi du réservoir, h_{ext} a peu d'effet sur le comportement du réservoir et il est fixé à $12\ W.K^{-1}.m^{-2}$. En revanche, h_{int} est un paramètre clé qui a été déterminé par méthode inverse. Pour ce faire, une expérience simple a été réalisée dans laquelle les évolutions de pression de chaque chambre (chambre du gaz en inox 316L : $V = V_1 = V_2 = 24\ litres$) ont été enregistrées en absence de flux après une perturbation thermique. Cette dernière a été obtenue en ouvrant, puis en refermant rapidement une vanne entre ces deux chambres du gaz en présence de deux pressions différentes à 30 °C. La Figure II- 16 montre la remontée de pression dans la première chambre du gaz par le réchauffement de la paroi interne. h_{int} est identifié à 4,3 $W.K^{-1}.m^{-2}$ en minimisant les écarts entre les courbes expérimentale et numérique de l'évolution de la pression en fonction du temps.

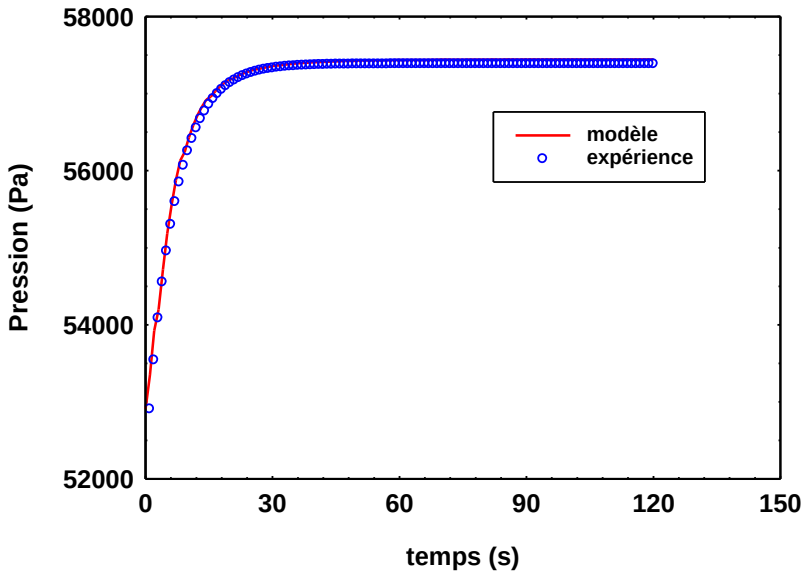

Figure II- 16. Identification du coefficient du transfert thermique h_{int} par minimisant l'écart, au sens des moindres carrées, entre les évolutions numérique et expérimentale de la pression.

4.4. Comportement du dispositif expérimental dans les régimes isotherme, adiabatique et réel

Pour un échantillon très perméable, par exemple du bois en direction longitudinale, nous sommes bien convaincus que le régime n'est plus isotherme. Equation II- 1 n'est donc rigoureusement plus valide. Dans ce paragraphe, nous allons utiliser le modèle numérique pour quantifier l'erreur produite sur la valeur de la perméabilité en fonction des conditions opératoires (géométrie de l'échantillon et volume du réservoir) et de la perméabilité de l'échantillon.

Cette analyse permet de définir un critère pour savoir dans quelles conditions le calcul de la perméabilité en régime isotherme reste valable.

La Figure II- 17 montre les comportements du système pour un échantillon de forte perméabilité de diamètre $18\ mm$ et d'épaisseur $30\ mm$ avec des chambres de $24\ l$ à une pression moyenne de $20\ mbar$ pour les régimes isotherme, adiabatique et réel, respectivement.

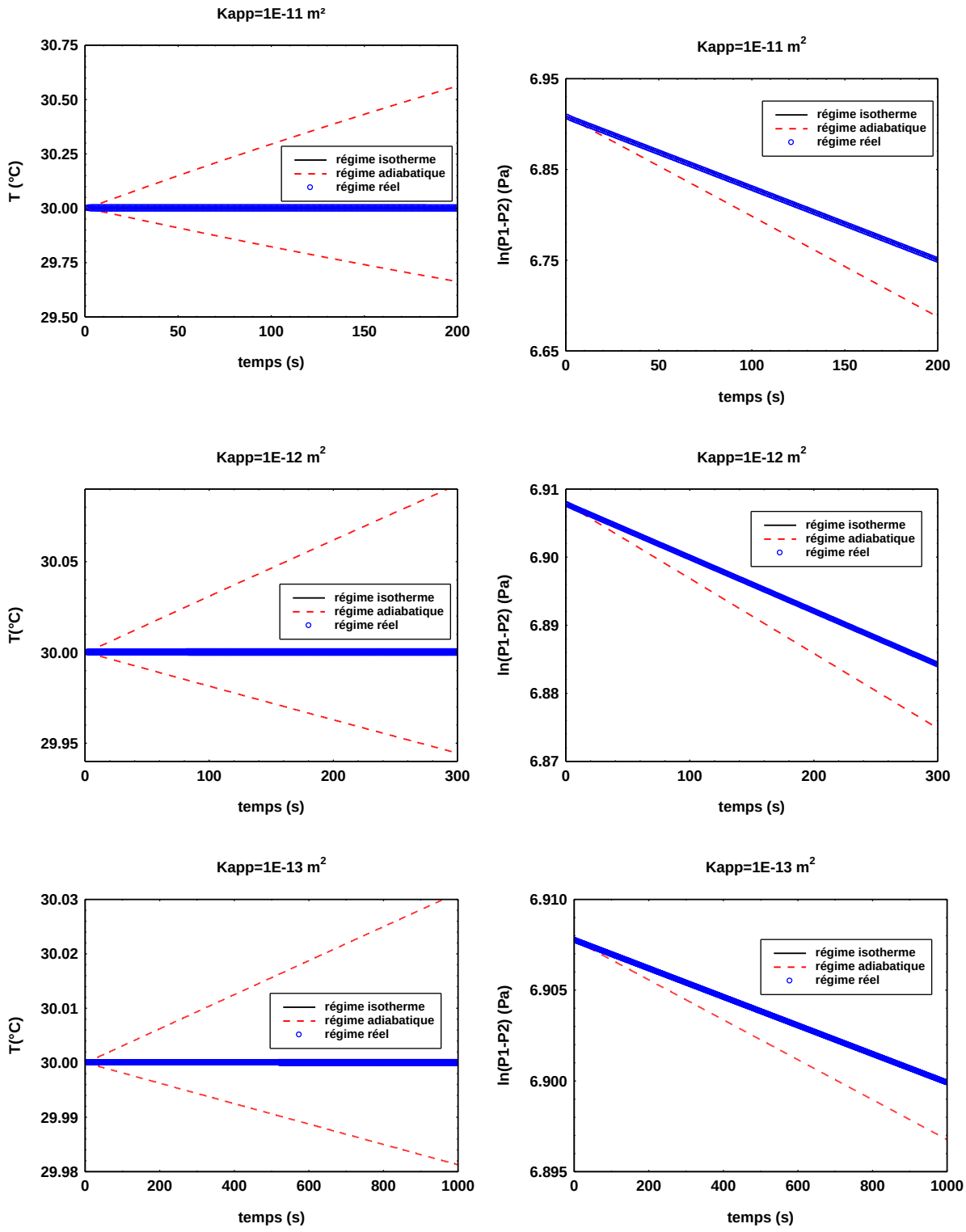

Figure II- 17. Comportements cinétiques du gaz pour un échantillon très perméable à 20 mbar (volume de la chambre du gaz: 24 l, diamètre de l'échantillon: 18 mm, épaisseur de l'échantillon : 30 mm, pression moyenne : 20 mbar). Evolutions de la température et du logarithme de la différence de la pression pour $K_{app} = 10^{-11}, 10^{-12}$ *et* $10^{-13}\ m^2$.

La Figure II- 17 montre clairement que pour un échantillon très perméable de $18\ mm$ de diamètre et de $30\ mm$ d'épaisseur à $20\ mbar$, la courbe du logarithme de la différence de pression en régime réel coïncide avec celle en régime isotherme. Ceci confirme bien que pour un échantillon du bois

longitudinal épais (épaisseur au-delà de $30\ mm$) le régime reste bien en régime isotherme pour la perméabilité supérieure à $10^{-13}\ m^2$ voire $10^{-11}\ m^2$. On a calculé les erreurs relatives issues du calcul de la perméabilité apparente K_{app} en régime isotherme par rapport au régime réel, elles sont $0{,}03\ \%$, $0{,}02\ \%$ et $0{,}01\%$ pour les perméabilités $10^{-11}, 10^{-12}\ et\ 10^{-13}\ m^2$, respectivement. Pour savoir les différences de la perméabilité apparente K_{app} en régime adiabatique par rapport au régime réel, on a aussi calculé les erreurs relatives, elles sont très proche de 40% pour les trois valeurs de perméabilité. Autrement dit l'utilisation du régime isotherme est toujours valide dans ce cas. On voit aussi que le temps de la perméation devient plus en plus longue pour la perméabilité allant de 10^{-11} à $10^{-13}\ m^2$, ce qui est logique car le flux de gaz est proportionnel à la perméabilité.

La Figure II- 18 montre les comportements du dispositif pour un échantillon très perméable de diamètre $18\ mm$ et d'épaisseur $30\ mm$ avec deux chambres de $24\ l$, mais à une pression moyenne de $1000\ mbar$.

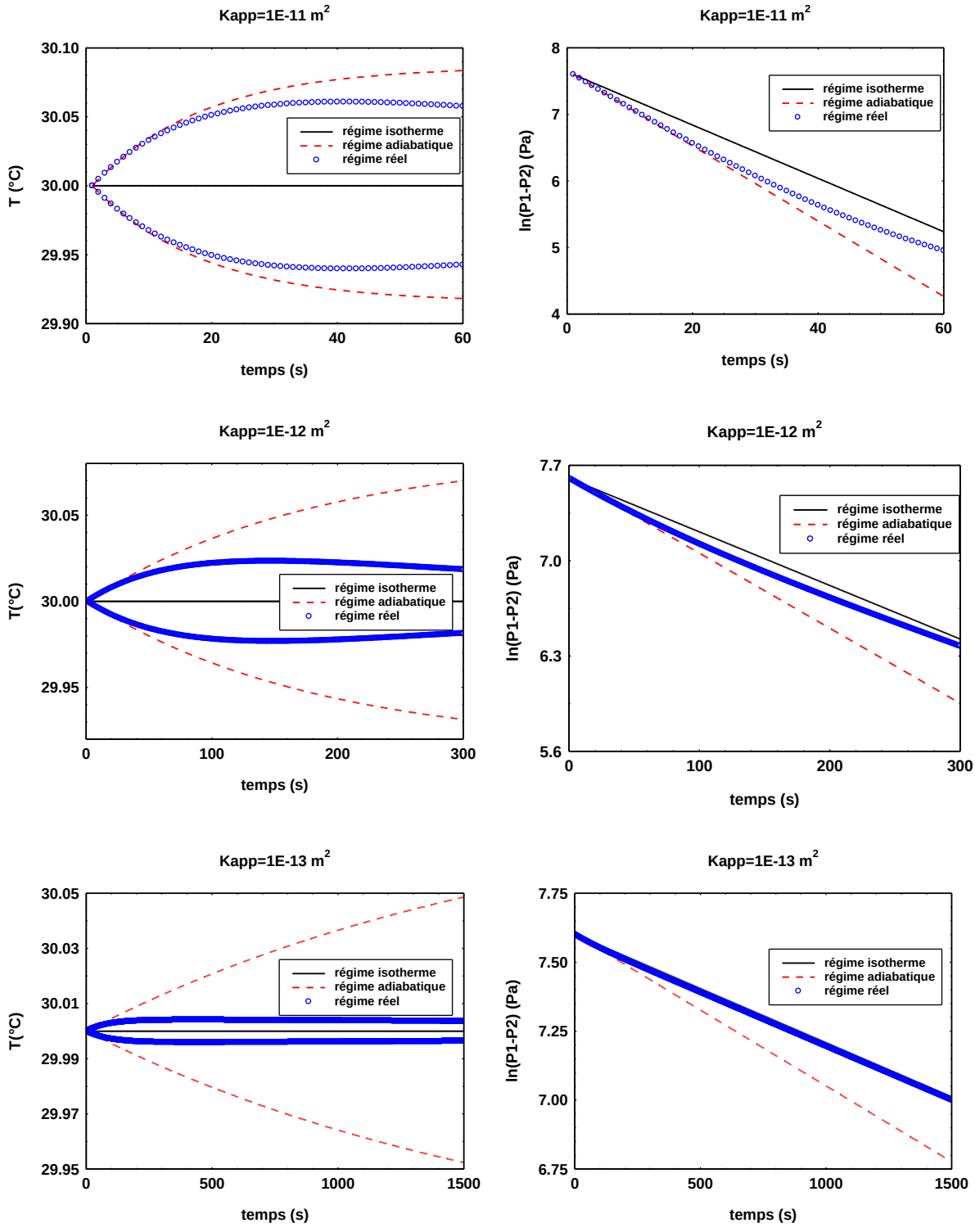

Figure II- 18. Comportements cinétiques du gaz pour un échantillon perméable à 1000 mbar (volume de la chambre du gaz : 24 l, diamètre de l'échantillon : 18 mm, épaisseur de l'échantillon : 30 mm, pression moyenne : 1000 mbar). Evolutions de la température, du logarithme de la différence de la pression pour $K_{app} = 10^{-11}, 10^{-12}$ *et* $10^{-13}\ m^2$.

La Figure II- 18 nous apprend que le même échantillon avec une pression moyenne plus élevée (à $1000\ mbar$) présente un régime très différent. Pour les perméabilités de 10^{-11} et $10^{-12}\ m^2$ le régime réel débute par un régime adiabatique qui rejoint ensuite le régime isotherme. C'est

compréhensible car à une pression moyenne plus élevée, le temps de relaxation devient plus court (car le module d'élasticité isostatique K défini par : $\Delta P = -K\frac{\Delta V}{V_0}$ est proportionnel à la pression). Aux temps courts, la pression du gaz change sans échange thermique avec l'extérieur donc il est en régime adiabatique. Le régime devient isotherme au fil du temps car il y a un échange de la chaleur entre le gaz et la paroi de la chambre du gaz. Pour la perméabilité de $10^{-13}\ m^2$ le gaz redevient très proche du régime isotherme dès le début de la relaxation. On a calculé les erreurs relatives de la perméabilité apparente K_{app} en régime isotherme par rapport au régime réel, elles sont 12%, 2% et $0{,}31\%$ pour les perméabilités 10^{-11}, 10^{-12} et $10^{-13}\ m^2$, respectivement. L'erreur diminue lorsque la perméabilité devient plus petite. Par rapport au régime adiabatique, les erreurs commises sont de 24%, 37% et 40% pour les perméabilité 10^{-11}, 10^{-12} et $10^{-13}\ m^2$, respectivement. A défaut, l'hypothèse d'un régime isotherme reste donc toujours mieux appropriée que l'hypothèse d'un régime adiabatique.

La Figure II- 19 montre les comportements du dispositif pour un échantillon très perméable de diamètre $72\ mm$ et d'épaisseur $10\ mm$ avec deux chambres de $24\ l$ à une pression moyenne de $20\ mbar$. Elle permet donc de tester le changement de géométrie de l'échantillon.

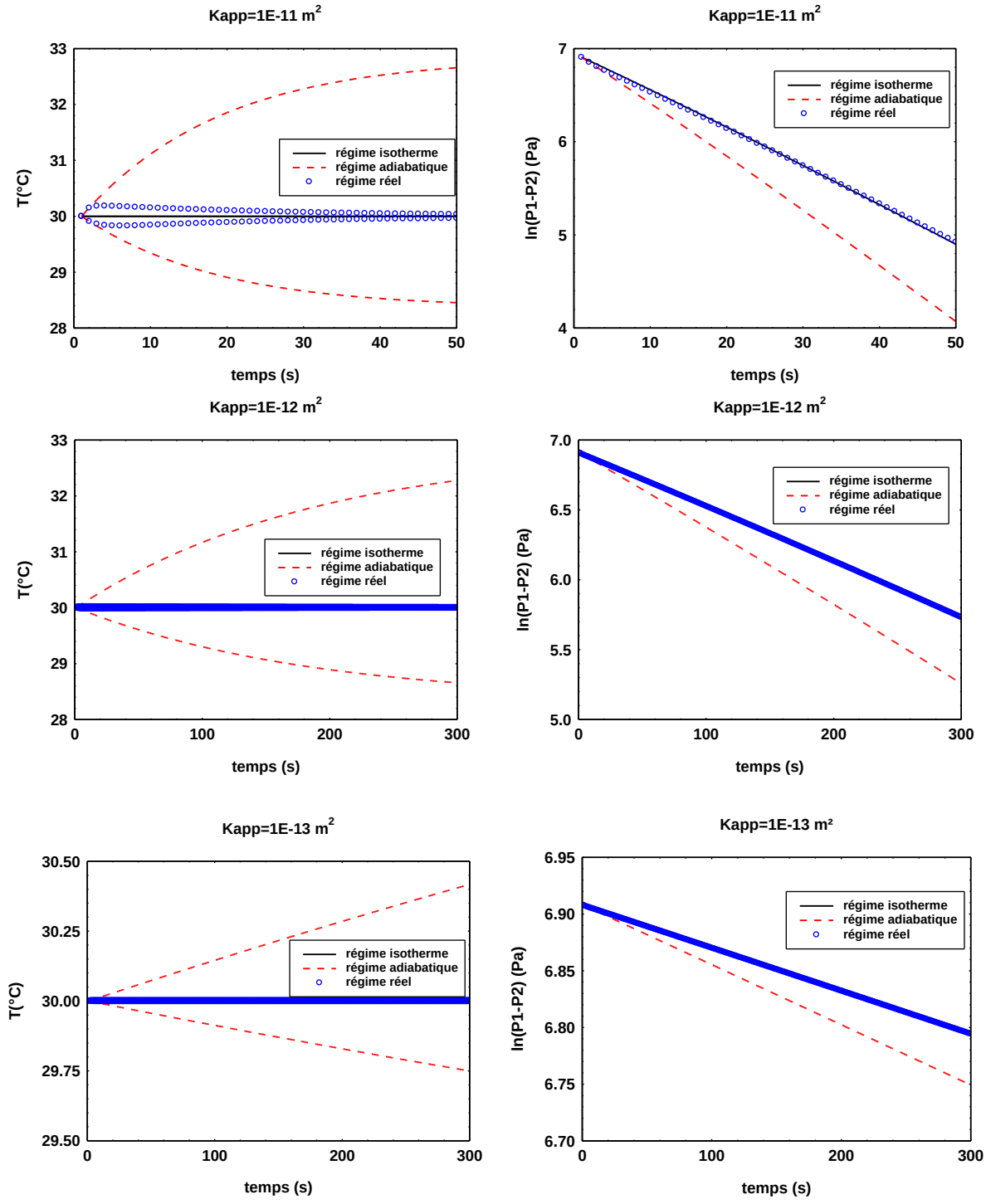

Figure II- 19. Comportements cinétiques du gaz pour un échantillon perméable (volume de la chambre du gaz : 24 l, diamètre de l'échantillon : 72 mm, épaisseur de l'échantillon : 10 mm, pression moyenne : 20 mbar). Evolutions de la température, du logarithme de la différence de la pression pour $K_{app} = 10^{-11}, 10^{-12}$ *et* $10^{-13}\ m^2$.

La Figure II- 19 montre l'effet de la géométrie de l'échantillon (diamètre : 72 mm, épaisseur : 10 mm) à la même pression que la Figure II- 17 à $20\ mbar$. On tire de la même conclusion : pour une pression moyenne très faible (à $20\ mbar$), le régime reste isotherme, même si l'on peut distinguer une petite déviation aux temps courts pour une perméabilité de $10^{-11}\ m^2$. On a comparé les erreurs

commises en calculant la perméabilité apparente K_{app} en régime isotherme par rapport au régime réel à $20\ mbar$, elles sont de 2%, $0{,}21\ \%$ et $0{,}01\%$ pour les perméabilités de $10^{-11}, 10^{-12}\ et\ 10^{-13}\ m^2$, respectivement. Le modèle théorique en régime isotherme est valable pour les faibles pressions moyennes.

La Figure II- 20 montre les comportements du dispositif avec un échantillon très perméable de grand diamètre à 1000 mbar (diamètre = $72\ mm$, épaisseur = $10\ mm$, volume= $24\ l$).

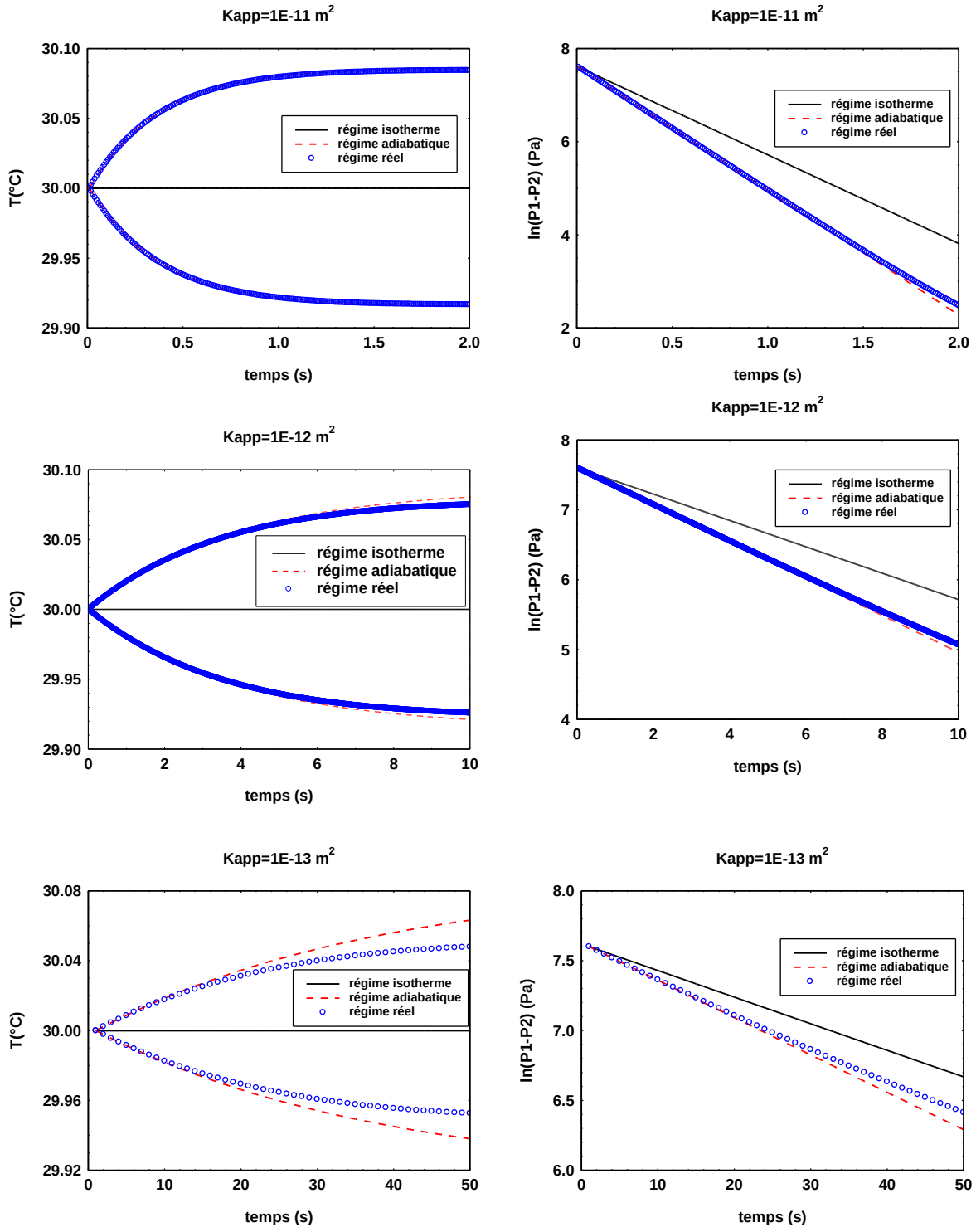

Figure II- 20. Comportements du dispositif pour un grand diamètre à 1000 mbar (volume de la chambre du gaz : 24 l, diamètre de l'échantillon : 72 mm, épaisseur de l'échantillon : 10 mm, pression moyenne : 1000 mbar). Evolutions de la température, du logarithme de la différence de la pression pour $K_{app} = 10^{-11}, 10^{-12}\ et\ 10^{-13}\ m^2$.

Avec une pression moyenne élevée et un grand diamètre d'échantillon, des valeurs de perméabilité élevées conduisent toujours à une relaxation très rapide. La Figure II- 20 confirme que l'on est cette fois-ci très proche du régime adiabatique. Les erreurs issues du calcul en régime isotherme sont de 27%, 26% et 22% pour les perméabilités de $10^{-11}, 10^{-12}\ et\ 10^{-13}\ m^2$, respectivement. Celles calculées en régime adiabatique sont de 3%, 4% et 10% pour les perméabilités de

$10^{-11}, 10^{-12}\ et\ 10^{-13}\ m^2$, respectivement. C'est la seule configuration pour laquelle le régime adiabatique est le bon choix à défaut d'un modèle de comportement en régime réel.

En conclusion, l'hypothèse du régime isotherme reste tout à fait valable dès que le temps caractéristique de relaxation des pressions est supérieur à la minute. Dans le cas contraire, il est impératif d'utiliser le modèle de régime réel pour l'analyse des courbes expérimentales. Pour cela, la valeur de la perméabilité est identifiée par méthode inverse. Un programme a été écrit en Matlab à cette intention. Il permet de calculer les courbes théoriques en régime réel à partir l'une valeur estimée de perméabilité. Cette valeur est ensuite ajustée pour minimiser l'écart entre les courbes de pression théoriques et expérimentales au sens des moindres carrés.

4.5. Fiabilité du dispositif expérimental

Afin d'avoir une bonne qualité de mesure, plusieurs questions se posent concernant la fiabilité du dispositif expérimental :

- Toutes les mesures de la perméabilité s'effectuent dans un caisson thermique calibré à une température considérée constante. Est-ce que ce caisson thermique régule correctement la température par le régulateur PID ?
- Les évolutions de pression dans les deux réservoirs sont enregistrées par deux capteurs de pression. Est-ce que ces deux capteurs sont bien calibrés à éliminer toute incertitude de mesure de pression?
- L'étanchéité du dispositif est capitale sur la qualité de mesure, est-ce qu'il est possible de minimiser le taux de fuite dans le système de mesure ?

Pour répondre à ces 3 questions, nous avons fait des tests préliminaires pour s'assurer de la fiabilité du système de mesure.

4.5.1. Régulation de température dans le caisson isotherme

Un thermocouple a été mis à l'intérieur du caisson isotherme et enregistre la variation de température. Ce caisson contient tout le dispositif de mesure et il est contrôlé par un régulateur PID, une sonde de température Pt100, un contacteur statique, et deux résistances électriques. On choisit une température de consigne de 30 °C. Partant de la température ambiante, la température augmente progressivement dans le caisson jusqu'à 30 °C et on suit la fluctuation de la température en fonction du temps (Figure II- 21).

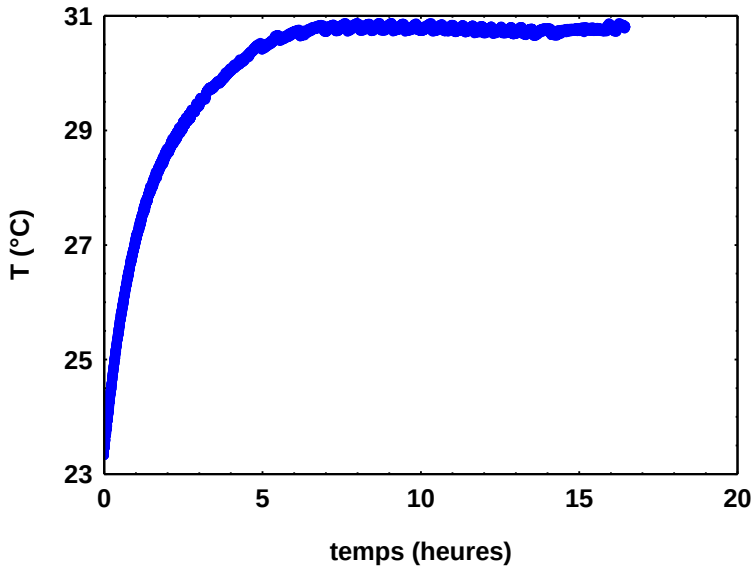

Figure II- 21. Evolution de la température dans le caisson isotherme à partir de la température ambiante (température de consigne = 30°C).

La température atteint 30 °C après environ 6 heures et suit ensuite un plateau stable dans le temps. On a évalué la stabilité de la température, il est de l'ordre de $\pm\ 0{,}5\ °C$ pic à pic, avec un écart type de $0{,}04\ °C$. Le caisson que nous avons construit permet donc bien d'avoir un environnement isotherme.

4.5.2. Test de l'étanchéité du dispositif

Gardant à l'esprit que notre système mesure le débit grâce aux variations de pression, la qualité et la précision de la mesure dépendent directement de l'étanchéité du dispositif expérimental. Pour assurer que le dispositif est étanche, plusieurs endroits ont besoin d'être testés : l'étanchéité dans la chambre du gaz 1, l'étanchéité de la chambre du gaz 2 et l'étanchéité entre le contour de l'échantillon et la chambre à l'air. Pour ce faire, un échantillon PVC (Polychlorure de vinyle) qui est supposé imperméable au gaz a été placé au milieu du porte échantillon. On vide le système à l'aide de la pompe à vide pour donner deux pressions différentes dans les chambres du gaz 1 et 2, respectivement. La Figure II- 22 montre les variations de pression dans les deux réservoirs à 30 °C. Les variations initiales, plus rapides, correspondent à l'établissement du régime thermique. Ensuite, le taux de fuite est de l'ordre de $0{,}3\ mbar/heure$ pour une pression de 30 mbar, c'est à dire dans les conditions de fuite maximale. A noter aussi que les deux courbes sont parfaitement parallèles, ce qui démontre la parfaite étanchéité latérale au niveau du porte-échantillon.

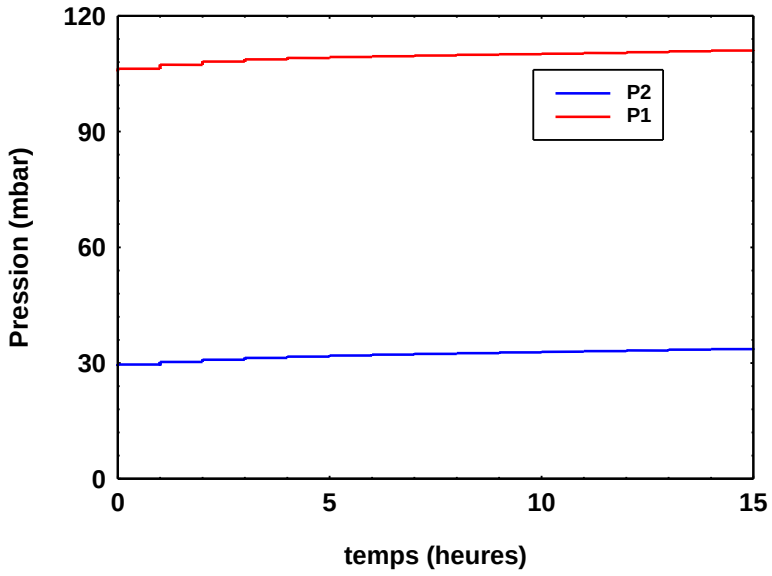

Figure II- 22. Variations de pression dans les volumes V2 et V2 en absence de flux dans l'échantillon.

5. Modèles théoriques du bois : modèle en séries de pores non identiques

Les paramètres morphologiques du bois (taille et nombre des pores) sont identifiés par le modèle en séries de pores non identiques (Figure II- 23) prenant en compte des interconnexions entre trachéides (ou vaisseaux) et ponctuations qui reflètent une microarchitecture complexe du bois. Dans ce modèle de double porosité, la trachéide ou le vaisseau est modélisé par un cylindre, et chaque ponctuation est modélisée soit par un cylindre, soit par une fente, soit par un orifice. Donc plusieurs modèles ont été utilisés pour identifier les paramètres morphologiques du bois :

- Modèle du cylindre
- Modèle de fente
- Modèle de l'orifice

On commence par présenter le modèle du cylindre qui modélise à la fois la trachéide ou le vaisseau et la ponctuation par un cylindre (Beskok 1999). On présente ensuite le modèle de fente qui modélise la trachéide ou le vaisseau par un cylindre et la ponctuation par une fente (Sharipov 1998). Finalement, on présente le modèle de l'orifice qui modélise la trachéide ou le vaisseau par un cylindre et la ponctuation par un orifice (Borisov 1973).

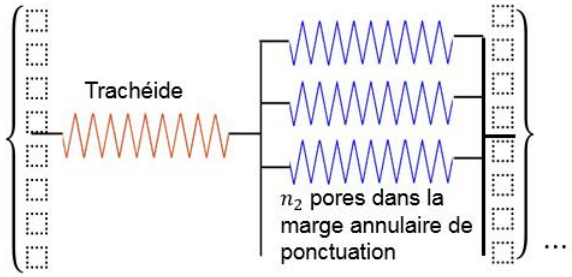

Figure II- 23. Schéma du modèle en séries de pores non identiques.

5.1. Modèle du cylindre

Le modèle du cylindre considère que le bois est composé de deux tailles de cylindre : un cylindre de grand diamètre pour représenter la trachéide chez les résineux ou le vaisseau chez les feuillus, et un cylindre de petit diamètre pour représenter le petit pore dans la marge annulaire de ponctuation chez les résineux ou les feuillus.

Supposant n_1 grands cylindres de longueur L_1 et de rayon $a_1$chacun d'eux étant en série avec n_2 petits cylindres dans la marge annulaire de ponctuation de longueur L_2 et de rayon a_2, le débit volumique pour les grands cylindres prenant le modèle du Beskok 1999 s'écrit :

$$Q_1 = -n_1 \frac{\pi a_1^4}{8\mu} \frac{P_0 - P_{amont}}{L_1} (1 + aK_{n1})[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n1}}{1 - bK_{n1}}] \qquad \textit{Equation II- 6}$$

avec P_{amont}: pression en amont du grand cylindre

P_0: pression en aval du grand cylindre

Le débit volumique pour les petits cylindres est :

$$Q_2 = -n_1 n_2 \frac{\pi a_2^4}{8\mu} \frac{P_{aval} - P_0}{L_2} (1 + aK_{n2}) \left[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n2}}{1 - bK_{n2}}\right] \qquad \textit{Equation II- 7}$$

avec P_{aval}: pression en aval du petit cylindre

Combinant l'Equation II- 6 et l'Equation II- 7, nous obtenons :

$$\frac{8QL_2\mu}{n_1 n_2 \pi a_2^4} \frac{1}{(1 + aK_{n2})\left[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n2}}{1 - bK_{n2}}\right]} + \frac{8QL_1\mu}{n_1 \pi a_1^4} \frac{1}{(1 + aK_{n1})[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n1}}{1 - bK_{n1}}]} = P_{amont} - P_{aval} \qquad \textit{Equation II- 8}$$

Donc le débit volumique Q devient alors :

$$Q = (P_{amont} - P_{aval}) \frac{n_1 \pi}{8\mu} \frac{a_2^4(1 + aK_{n2})\left[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n2}}{1 - bK_{n2}}\right] a_1^4(1 + aK_{n1})[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n1}}{1 - bK_{n1}}]}{(1-\alpha)La_2^4(1 + aK_{n2})\left[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n2}}{1 - bK_{n2}}\right] + \frac{\alpha L a_1^4}{n_2}(1 + aK_{n1})[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n1}}{1 - bK_{n1}}]} \qquad \textit{Equation II- 9}$$

avec: $L_1 = (1 - \alpha)L$: longueur accumulée de grands cylindres; α: ratio de longueur accumulée de petits cylindres par rapport à la longueur totale L (la distance plus courte entre deux faces de

l'échantillon du bois)

$L_2 = \alpha L$: longueur des petits cylindres

$n_1 = \frac{\varepsilon S}{\pi a_1^2}$: avec ε: porosité active

D'après la loi de Darcy on peut trouver la perméabilité apparente :

$$K^{app} = \frac{\varepsilon}{8a_1^2}\frac{(1+aK_{n2})[1+4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n2}}{1-bK_{n2}}](1+aK_{n1})[1+4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n1}}{1-bK_{n1}}]}{\frac{1-\alpha}{a_1^4}(1+aK_{n2})\left[1+4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n2}}{1-bK_{n2}}\right]+\frac{\alpha}{n_2 a_2^4}(1+aK_{n1})[1+4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{K_{n1}}{1-bK_{n1}}]} \quad \textit{Equation II- 10}$$

Dans ce modèle il y a 4 inconnus à identifier : ε, a_1, a_2 et $\frac{\alpha}{n_2}$.

Remarque : $1-\alpha \cong 1$ car α est très petit devant 1.

5.2. Modèle de fente

Le modèle de fente considère le contour entre la paroi de la ponctuation aréolée et le torus comme une fente. Cette fente est décrite par le modèle de Sharipov 1998. Dans son modèle, le débit volumique à travers une fente est donné par :

$$Q = \frac{\dot{M}^f}{\rho} = \frac{\dot{M}^f}{\frac{\bar{P}M_{air}}{R_g T}} = \frac{R_g T}{\bar{P}M_{air}} R\Delta P \sqrt{\frac{M_{air}}{2\pi R_g T}}\xi_P^f \quad \textit{Equation II- 11}$$

Où $\dot{M}^f$: débit massique, $\dot{M}^f = \xi_P^f \dot{M}_{fm}^f$; ξ_P^f : débit massique normalisé (pour $\delta_I \ll 8$, Kn>>0,11) , $\xi_P^f = 1-(0.2439log_{10}\delta_I - 0.3833)\delta_I - (0.0338log_{10}\delta_I - 0.055)\delta_I^2$; δ_I : coefficient de raréfaction, $\delta_I = \frac{\sqrt{\pi}}{2}\frac{1}{Kn}$; $\dot{M}_{fm}^f$: débit massique dans le régime de glissement moléculaire, $\dot{M}_{fm}^f = R\Delta P\sqrt{\frac{M_{air}}{2\pi R_g T}}$

ρ : masse volumique, $\rho = \frac{\bar{P}M_{air}}{R_g T}$

Supposant n_1 grands cylindres de longueur accumulée L et de rayon a_1 chacun d'eux étant en série avec n_2 fentes dans la marge annulaire de ponctuation de longueur p et de largeur a_2, prenant la même analogie, on retrouve la perméabilité apparente pour le modèle de la fente :

$$K_{app} = \frac{\varepsilon}{\pi a_1^2}\frac{\frac{\pi a_1^4}{8}(1+\alpha Kn_1)(1+4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{Kn_1}{1+Kn_1})\frac{Kn_2 a_2^2 n_2 pL}{\pi}\xi_P^f}{\frac{\pi a_1^4}{8}(1+\alpha Kn_1)\left(1+4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{Kn_1}{1+Kn_1}\right)+\frac{Kn_2 a_2^2 n_2 pL}{\pi}\xi_P^f} \quad \textit{Equation II- 12}$$

Dans ce modèle il y a 4 inconnus à identifier : ε, a_1, a_2 et $n_2 p$

5.3. Modèle de l'orifice

Le modèle de l'orifice considère que la trachéide comme un grand cylindre décrit par le modèle de Beskok et les pores dans l'aréole comme les orifices circulaires. Ces orifices sont décrits par le modèle de Borisov 1973.

Dans son modèle, le débit volumique à travers un orifice est donné par :

$$Q = \frac{\dot{M}^{or}}{\rho} = \dot{M}^{or}\frac{R_g T}{\bar{P} M_{air}} = \frac{R^2 \Delta P}{\bar{P}}\sqrt{\frac{\pi R_g T}{2M_{air}}}\xi_P^{or} \qquad \textit{Equation II- 13}$$

Où $\dot{M}^{or}$: débit massique, $\dot{M}^{or} = \xi_P^{or}\dot{M}_{fm}^{or}$; ξ_P^{or} : débit massique normalisé (pour δ_I<50, Kn>0,018), $\xi_P^{or} = 1 + 0.342\delta_I$, $\dot{M}_{fm}^{or}$: débit massique dans le régime de glissement moléculaire,

$\dot{M}_{fm}^{or} = R^2\Delta P\sqrt{\frac{\pi M_{air}}{2R_g T}}$

Supposant n_1 grands cylindres de longueur accumulée L et de rayon a_1 chacun d'eux étant en série avec n_2 orifices circulaires dans la marge annulaire de ponctuation de rayon a_2, prenant la même analogie, on retrouve la perméabilité apparente pour le modèle de l'orifice :

$$K_{app} = \frac{\varepsilon}{\pi a_1^2}\frac{\frac{\pi a_1^4}{8}(1+\alpha Kn_1)(1+4\frac{Kn_1}{1+Kn_1})a_2^3 n_2 L Kn_2(1+0.342\delta_I)}{\frac{\pi a_1^4}{8}(1+\alpha Kn_1)\left(1+4\frac{Kn_1}{1+Kn_1}\right)+a_2^3 n_2 L Kn_2(1+0.342\delta_I)} \qquad \textit{Equation II- 14}$$

Dans ce modèle il y a 4 inconnus à identifier : ε, a_1, a_2 et n_2

6. Conclusion

Les matériels et méthodes utilisés au cours de ce travail ont été précisément décrits dans ce chapitre. Cela constitue un très bon complément aux descriptions plus succinctes données dans les articles : description de l'échantillonnage et de la préparation des échantillons, description du dispositif expérimental, du protocole et des précautions à prendre pour la réalisation de mesures rigoureuses, description de la méthode de mesure de la perméabilité en régimes isotherme et réel et présentation des modèles de bois pour finir.

Le lecteur bénéficie maintenant de tous les éléments indispensables à la bonne compréhension du sujet, de ses résultats et conclusions. Les parties suivantes (chapitre 3 et 4) constituent les résultats et discussions de ce travail. Elles ont été rédigées sous forme de publications.

III. Un nouveau dispositif pour mesurer la perméabilité gazeuse sur une large plage de pression : caractérisation de glissement moléculaire sur les différentes espèces du bois et les matériaux à base de bois

1. Introduction

Les outils expérimentaux et numériques permettent aujourd'hui d'appréhender les transferts en milieux poreux à partir notamment de la description 3-D de la morphologie des pores (micro-tomographie, voire nano-tomographie). Cependant ces méthodes échouent lorsque les pores contrôlant les transferts dans le milieu sont de taille inférieure au micromètre, échappant alors aux méthodes d'investigation 3-D. Cela est par exemple le cas pour des roches peu perméables, des membranes d'ultrafiltration ou encore des aérogels…

Le travail présenté dans cette partie présente un dispositif expérimental original développé au laboratoire permettant de déterminer les propriétés de transfert en phase gazeuse au sein d'un milieu poreux. Il permet la détermination de la perméabilité apparente dans une large gamme de perméabilité gazeuse (10^{-10} à 10^{-18} m²) et de pression moyenne (30 mbar jusqu'à 1 bar).

Le dispositif est composé de deux réservoirs de volume identique (0.2 ou 24 L) connectés en série au support recevant l'échantillon à tester. L'ensemble est placé dans un caisson hermétique régulé en température et alimenté en gaz. Une différence de pression est imposée de part et d'autre de l'échantillon et grâce à des capteurs de pression de haute précision ainsi qu'à une analyse appropriée des données, le flux de gaz traversant l'échantillon est déterminé sans instrumentation supplémentaire à partir de la mesure de l'évolution des pressions. La perméabilité apparente de l'échantillon est alors directement obtenue à partir de la loi de Darcy. L'évolution de cette dernière en fonction de l'inverse de la pression moyenne permet d'obtenir la perméabilité intrinsèque du matériau. La taille des pores effectifs (*ie* participant effectivement au transport de gaz) est quant à elle directement obtenue à partir de la perméabilité intrinsèque et du facteur de Klinkenberg.

Cette approche originale a été appliquée à différents milieux poreux : deux espèces de bois (épicéa, *Picea abiès*, et hêtre, *Fagus silvatica*) testées dans les trois directions matérielles (longitudinale, radiale et tangentielle), deux panneaux à base de fibres de bois (Medium Density Fibreboard et Low Density Fibreboard) et du béton cellulaire. Les résultats présentés dans cette étude montrent que les perméabilités intrinsèques obtenues sont en bon accord avec la littérature et les tailles de pores identifiées cohérentes avec la morphologie des matériaux. Des phénomènes de glissement moléculaire ont été observés pour de faibles pression moyenne.

Ce travail a été soumis dans la revue ***Holtzforschung*.**

2. A Novel Device to Measure Gaseous Permeability over a Wide Range of Pressure: Characterization of Slip Flow for Various Wood Species and Wood-Based Materials

Wei AI, Hervé DUVAL, Floran PIERRE and Patrick PERRÉ[1]

Laboratoire de Génie des Procédés et Matériaux, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, Châtenay-Malabry, 92290, France

ABSTRACT

A novel device was conceived and built to measure the apparent gaseous permeability of porous media over a large range of permeability values (10^{-10} to $10^{-18}\ m^2$) and mean pressures ($1\ bar$ down to ca. $40\ mbar$).

An extensive series of experimental data are presented and analysed for various porous media: (i) two wood species in different material directions, *i.e.*, Norway spruce (*Picea abies*) and European beech (*Fagus silvatica*), and, for comparison, (ii) three simpler porous media, *i.e.*, an autoclaved aerated concrete (AAC, light concrete) and two wood-based panels.

For all porous media, the intrinsic permeability, the gas slippage factor and the effective pore size were determined from the variations of the apparent permeability as a function of mean pressure. Our results are in good agreement with previous studies for spruce and bring new insights for beech and wood-based materials. For all products, the effective pore sizes identified from our measurements are closely linked to the medium morphology.

In particular, we found that, in spite of the huge anisotropic ratios between wood's longitudinal and tangential directions, the identified pore size is similar and corresponds to anatomical features: openings in margo for spruce and scalariform perforation plates for beech. Besides, the pore size identified for beech in the radial direction suggests that radial permeability is most probably controlled by the openings in ray cells, either pits or intercellular voids.

Keywords: Anisotropy, Klinkenberg factor, Knudsen number, Pore radius, Porous media.

Introduction

Many transformation processes or material usages induce mass transfer in wood, either by diffusion or by Darcy's flow: these can include drying, impregnation, bending, and barrels.

[1] Corresponding author: patrick.perre@centralesupelec.fr

The understanding, prediction and control of these processes require an extensive knowledge of wood properties.

Permeability is defined as the ease with which a fluid is transported through a porous material under the influence of a pressure gradient (Dullien 1992). The porosity (fraction of the volume of voids over the total volume), the tortuosity (the ratio of the length of a flow line between two points to the straight line distance between those two points), the pore size, their distribution and their interconnectivity, and the flow regime—viscous (Darcy's law), slip, transition and Knudsen flow—are among the parameters that influence the apparent gaseous permeability. Except for the fluid properties, all of these factors reflecting the anatomy of wood are intrinsic properties. For example, in the longitudinal direction, the flow transports primarily through the axially oriented anatomical elements: tracheids interconnected by bordered pits in softwoods (Coté 1958), and vessels and partly fibres in hardwoods. The longitudinal permeability of wood species varies roughly from 10^{-10} to $10^{-14} m^2$ (Choong and Kimbler 1971, Choong et al. 1974, Perré and Karimi 2002). These orders of magnitude are valid either for the apparent gaseous permeability or for liquid permeability. Indeed, the liquid permeability is always lower than the gaseous permeability, because the slip flow is negligible for liquid and because it is very difficult to avoid entrapped air in wood (Siau, 1984). Typical permeability values in the transverse plane range from 10^{-15} to $10^{-18} m^2$ (Choong and Kimbler 1971, Chen et al. 1998, Perré 1987), even though extremely low values ($3.10^{-21} m^2$) were reported for spotted gum, an Australian species (Redman et al. 2012).

Indeed, wood tissues are organised to ensure an easy longitudinal sap migration: most cells have a large shape ratio, with the length parallel to the tree axis, giving rise to impressive anisotropy ratios (Perré 2007). In the radial direction, the flow is able to pass through the horizontally-aligned rays which can substantially contribute to gaseous permeability (Balantinecz 1963, Comstock 1970, Matsumura et al. 1999, Usta and Hale 2006). The radial permeability is deeply influenced by the number and size of rays, which may vary greatly among different species. Consequently, the permeability is usually much smaller in the tangential direction than in the radial direction. Based on a comprehensive literature review on various wood species, Comstock (1970) reported a range from 520 to 81,600 for the ratio of longitudinal to tangential permeability and a range from 15 to 547,000 for the ratio of longitudinal to radial permeability. The ratios reported in this paper for Spruce heartwood are 25,000 and 2,300 respectively. In hardwood, fluid flow is ensured by lines of vessel cells connected by perforation plates and in softwood by tracheids, namely earlywood tracheids, connected by bordered pits (Comstock 1967). For beech, ratios of 65,000 and 3,000 were determined by Perré (2007), for the ratios longitudinal to tangential and longitudinal to radial respectively.

As a combination of wood variability and anisotropy ratios, wood gaseous permeability presents a wide range of values, typically 10 decades from 10^{-10} to $10^{-20}\ m^2$.

The flow regime, which is a pressure-dependent parameter, is another factor that influences the gaseous permeability. When a rarefied gas is forced to flow through wood, it is known

that non-Darcian flow can occur and that it influences the apparent permeability. Heid et al. (1950) explained in their study that permeability to gases, which results in higher values at low pressures, is the result of the slip of gas molecules near a solid wall. In general, the slippage effect becomes important when the mean free path of the gas molecule is comparable to the smallest structural dimensions (radius of vessel and pit aperture) along the flow pathway. The Knudsen number, K_n, is a dimensionless parameter defined as the ratio of the mean free path λ and the pore radius r:

$$K_n = \frac{\lambda}{r} \tag{1}$$

The Knudsen number is commonly used to classify flow regimes in the porous media.

The mean free path can be approached using the kinetic theory of gases. Under the hard sphere gas approximation (Hirschfelder et al., 1954), the mean free path reads as:

$$\lambda = \frac{16\mu_g}{5P}\sqrt{\frac{RT}{2\pi M}} \tag{2}$$

Using equation (2), the mean free path at $25°C$ equals $69\ nm$ at the atmospheric pressure and $1.38\ \mu m$ at $50\ mbar$. With the order of magnitude of $0.2\ \mu m$ for the largest opening in the margo of bordered pits in softwood (Siau 1984), the Knudsen number ranges from ca. 0.35 to 7 over this range of pressure. These orders of magnitude emphasise the effect of slip flow that might be encountered in wood.

Whatever the sample, the apparent permeability always increases with the reciprocal pressure. This is due to the slippage of gas molecules at the wall of the pore that starts to be important when the Knudsen number becomes higher than 0.1. Klinkenberg (1941) proposed a linear equation between the apparent permeability K_{app} and the reciprocal mean pressure $1 / \overline{P}$:

$$K_{app} = K_\infty\left(1 + \frac{b}{\overline{P}}\right) \tag{3}$$

The intrinsic permeability K_∞ corresponds to a flow without slip flow, which would be obtained at infinite pressure (a perfect zero velocity at the solid walls is ensured with a mean free path equal to zero). The Klinkenberg's factor *b* can be related to the effective pore radius $\langle r \rangle$ via the Knudsen number K_n:

$$\frac{b}{\overline{P}} = 4cK_n = \frac{4c\lambda}{\langle r \rangle} \tag{4}$$

where c is a constant value close to the unit (Klinkenberg 1941). Using expression (2), the effective pore radius is related to factor b by the following equation:

$$\langle r \rangle = \frac{64c\mu}{5b}\sqrt{\frac{RT}{2\pi M}} \quad (5)$$

Thus, the analysis of the variations (due to slippage) of K_{app} as a function of $1 / \overline{P}$ provides not only the intrinsic (or Darcy) permeability (intercept at $1 / \overline{P} = 0$) but also an estimate of the effective pore radius (through equations 3 to 5).

However, the studies on slip flow in wood are rare and often restricted to the longitudinal direction since (i) the slippage analysis requires permeability measurement over a large range of mean pressure for each sample and each direction and (ii) due to the very low transverse permeability of wood, measurements as a function of mean pressure is difficult.

Among the few available works in this field, Comstock (1967) compared the longitudinal permeability of wood using liquid and different gases, where the effect of the slip flow is obvious. Consistently, for the same pressure level, the apparent permeability depends on the nature of the gas, but the intercept corresponding to an infinite pressure, the intrinsic permeability, does not. Some other works were devoted to this question of slip flow in wood in longitudinal direction (Bolton and Petty 1978, Petty and Purich 1980, Lu and Avramidis 1999). We found only two papers with slip flow data in both longitudinal and transverse directions (Petty and Preston 1969, Petty 1970). Using the slippage factor, these authors successfully identified the effective pore radius involved in the fluid pathway for softwoods species and found the same order of magnitude in longitudinal and transverse directions, that of the typical opening in the margo of bordered pits.

This literature review, summarised in table 1, reveals a lack of data on slip flow measurements, especially in transverse direction. Most of these measurements were done decades ago, with rigorous but tedious methods. Indeed, most of the published works determine the flow rate by the change of water level in a tube over a certain period of time. The aim of this paper is (1) to determine the gaseous permeability in the presence of slip flow, and (2) identify the effective pores size from the analysis of the apparent permeability variations as a function of mean pressure. For this purpose, a novel in-house experimental apparatus was designed to measure the apparent gaseous permeability over a wide range of permeability values (10^{-10} to $10^{-18}\ m^2$) and a large range of mean gaseous pressures ($1\ bar$ down to ca. $30 - 40\ mbar$). Thanks to accurate pressure sensors and appropriate data analysis, gas flowrates in the set-up are determined without additional instrumentation. In this way, any deviation of flowmeters when used in rarefied gas conditions is avoided. In addition, by using high performance vacuum valves with actuators, the (usually cumbersome) scan in mean pressure for one sample can be fully automatic while keeping maximum accuracy.

Table 1 – A summary of representative experimental works focused on gaseous permeability of wood.

Authors	Species	Directions	Pressure range	Mass flow determination
Rice 1996	Eastern white pine, Red spruce, Balsam fir	L	1 bar	Gas flowmeter
Rogério et al. 2010	Eucalyptus grandis and citriodora	L	1 bar	Gas flowmeter
Taghiyari 2013	Beech, poplar, Hornbeam	L	1 bar	Water position in a tube determined by electronic sensors.
Cai and Oliveira 2007	Subalpine fir	L, R, T	1 bar	Rotameter flowmeter
Wang 1991	Pine, poplar, larch, birch	L, R, T	1 bar	Change of water level in a tube
Tanaka et al. 2015	Sugi	L, R, T	1 bar	Change of water level in a tube
Lu and Avramidis 1999	Red oak, red alder, pine, Douglas-fir	L	100-400 mbar	Rotameter flowmeter and water level in a tube
Lihra et al. 2000	Balsam fir	L, R, T	1-4 bar	Flowmeter
Petty and Preston 1969	Some softwood species	L, T	1 to 700 mmHg	Change of water level in a tube

In the following sections, we first describe our experimental set-up and the mathematical models used to determine gas permeability from pressure measurements (for brevity worries, only the isothermal model of the device is reported in the body of the present paper, the full non-isothermal model is appended). Then, this approach is applied to (i) two wood species in different material directions, Norway spruce (*Picea abies)* and European beech (*Fagus silvatica),* and (ii) three simpler porous media, *i.e.*, an autoclaved aerated concrete (AAC, light concrete) and two wood-based panels. Finally, a thorough analysis of the apparent permeability variations as a function of mean pressure is performed: effective pore size are identified and compared with structural or anatomical features.

Materials and methods

Sampling

Specimens of two wood species, Norway spruce (*Picea abies*) and beech (*Fagus silvatica*), two wood-based products, low density fiberboard (LDF) and medium density fiberboard (MDF) and one reference porous materials, autoclaved aerated concrete (AAC), were used in this study. Norway spruce samples were taken from a tree cut in the Risoux Forest in the east of France, whereas beech samples originated from a tree cut in the Rambouillet Forest in the Paris region. Wood specimens were dried under natural conditions. The tested material had an average basic density (BD: oven-dry mass to green volume) of $360\ kg.m^{-3}$ for Norway spruce and $560\ kg.m^{-3}$ for European beech. The MDF (Medium Density Fiberboard), LDF (Low Density Fiberboard), and light concrete have a density of $737\ kg.m^{-3}$, $156\ kg.m^{-3}$, and $559\ kg.m^{-3}$, respectively.

Defect-free Norway spruce and beech samples were cut from the heartwood zone of the wood log (Figure 1). Due to the high values of permeability for wood in the longitudinal direction, samples with a cylindrical shape with a diameter of $18\ mm$ and thickness of $30\ mm$ were cut from raw material using a hole saw. Because of the low permeability in the tangential direction, discs with a diameter of $72\ mm$ and a thickness of $10\ mm$ were prepared. For tangential sample, the radius of heartwood was not enough to have the same geometry. This is why we prepared samples with a diameter of $18\ mm$ and a thickness of $8\ mm$ (Figure 1).

For AAC, LDF, and MDF, a $18\ mm$ diameter cylindrically shaped hole saw was used to produce the $18\ mm$ diameter $\times$ $25\ mm$ thickness, $18\ mm$ diameter $\times$ $30\ mm$ thickness, and $18\ mm$ diameter $\times$ $15\ mm$ thickness cylindrically shaped samples, respectively.

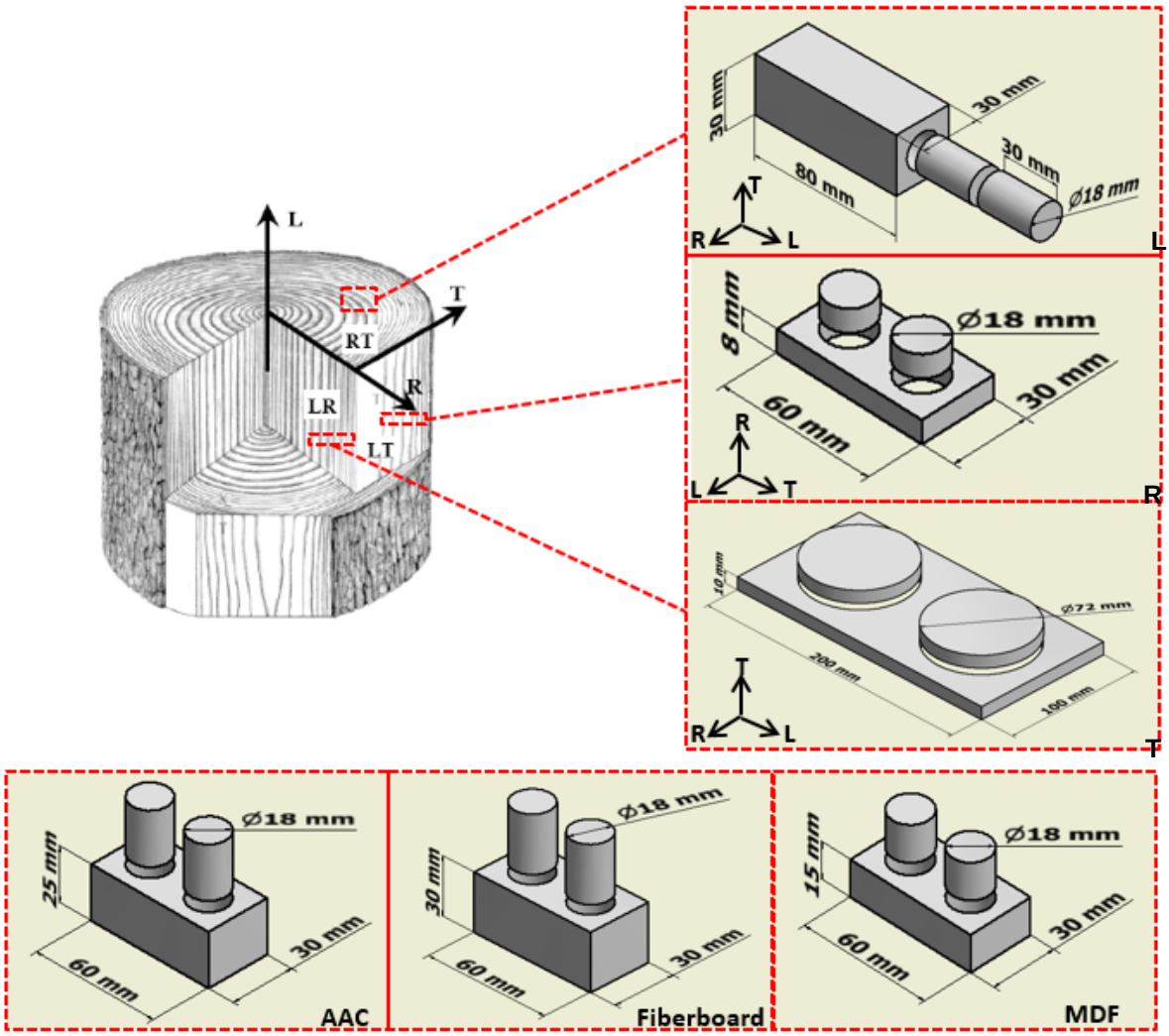

Figure 1 – Sampling and sample geometry for the different materials tested in this study: wood in longitudinal (L), radial (R), and tangential (T) directions, autoclaved aerated concrete (AAC), low density fiberboard and medium density fiberboard (MDF).

In order to avoid lateral leakage during permeability measurements, a surface prone to impervious contact with the rubber tube is required. This is obtained by coating the lateral surfaces of the sample with two successive layers of epoxy resin.

In the case of LDF, the medium is too porous to apply the same procedure without changing the sample porosity and permeability. Instead, a layer of epoxy resin was applied on a band of aluminium foil, which was itself rolled against the lateral face of the sample, before the resin had hardened. Then a layer of epoxy resin was coated on the external surface of the film to produce a surface sufficiently smooth to ensure air tightness.

Experimental apparatus

An in-house device was conceived to measure permeability over a large range of values and average pressure. The device comprises two rigid tanks (stainless steel or duralumin) of

identical volume built in series with a sample support, a system of vacuum valves with actuators, and two accurate pressure gauges (Figure 2). The system is completely airtight and isolated from its environment: the pressure in the system can just be set with the aid of two valves connected either to compressed gas or vacuum. The entire system is placed in a temperature-controlled chamber, built on demand (accuracy $\pm 0.5°C$, standard deviation $0.04°C$). This system allows a pressure gap to be imposed on the sample and the resulting gas flux to be determined by the evolution of pressures P_1 and P_2 in volumes V_1 and V_2 respectively. As the system is completely isolated from the atmospheric pressure, any measurement gas can be chosen in the compressed gas cylinder. In the present work, all measurements were carried out with air.

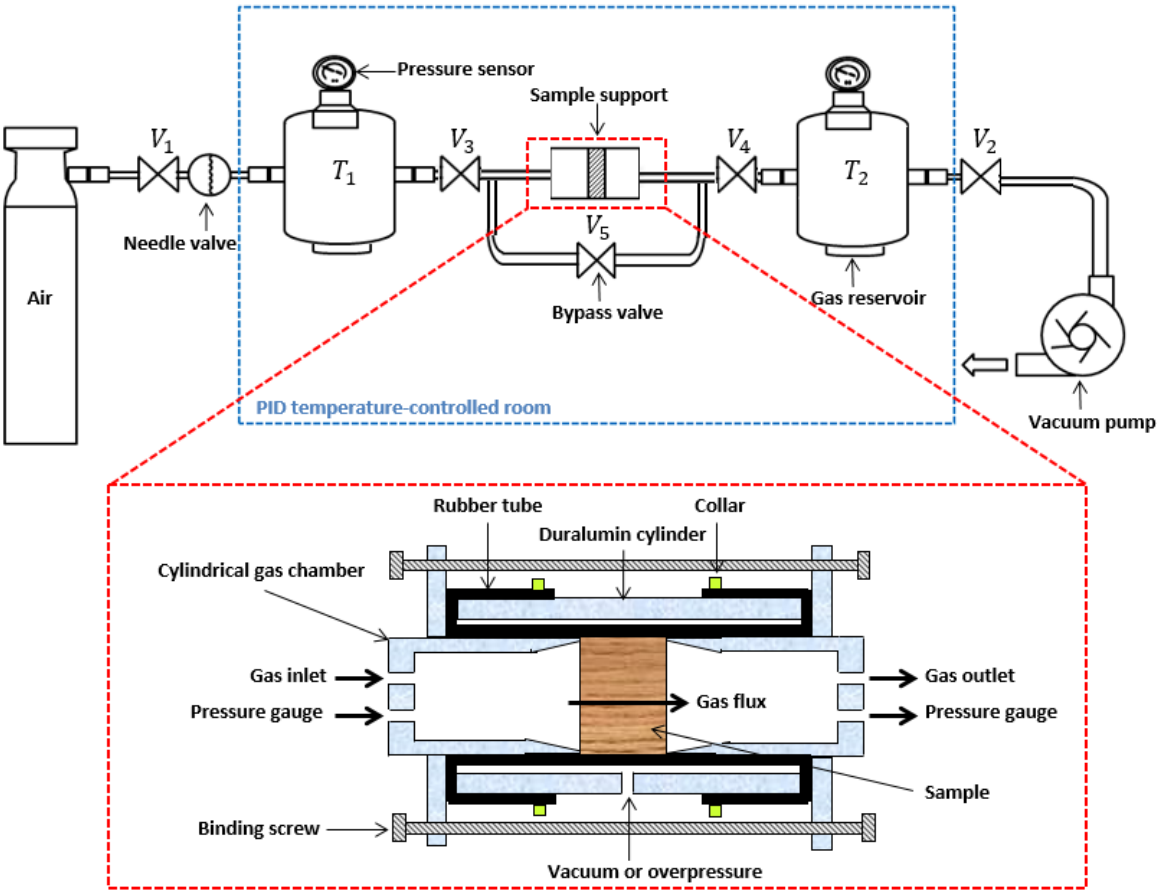

Figure 2 – Experimental device: general view and zoom in on the sample support for longitudinal wood samples.

Particular attention was paid to the design of the confinement cell to ease the handling of samples and to ensure air tightness during experiments. It is inspired by the ALU-CHA system developed by Perré and Agoua (2002). The support consists of an aluminium pipe covered inside by a piece of rubber tube having a smaller diameter than the aluminium cylinder (Figure 2). The air between the pipe and the rubber tube can be aspirated using a vacuum pump. This causes the adhesion of the rubber tube to the pipe, allowing the implementation of the sample inside the support. Vacuum grease on the lateral face of the

sample combined with an overpressure of more than $2\,bar$ applied inside the rubber tube during measurement ensures air tightness around the sample.

The experimental protocol comprises several steps:

1. Valves 3, 4, and 5 are open to ensure a quasi-even pressure in the entire system.
2. The desired measurement pressure is obtained either by increasing or decreasing the pressure, respectively by opening valves V_1 or V_2. The flux is limited due to the needle valve placed in series with V_1 and V_2, which allows the pressure to vary gently when a valve is open.
3. The bypass valve (V_5) is closed, which allows a short action of valve V_1 or V_2 to establish a pressure gap between tanks T_1 and T_2.
4. All valves are maintained in a closed position until isothermal conditions. This regime is assessed with type-K thermocouples placed in the tanks.
5. The solenoid valves V_3 and V_4 are opened, and the evolution of P_1 and P_2 (relaxation of the pressure gap) are recorded with highly sensitive pressure sensors (GE Druck, TERPS RPS/DPS 8000) able to measure pressure in the range 0 to $2{,}000\,mbar$ with a precision of 0.01%.

Steps 1 to 5 are repeated for several values of the average gaseous pressure in the sample. Step 4 can be bypassed for samples with low permeability, as the measurement time is much longer than the transient thermal regime in such cases.

Two sets of tanks (0.2 and 24 litres) and two sample supports (Support S_1: interior diameter = $78\,mm$, exterior diameter = $88\,mm$, and sample length up to $20\,mm$, and support S_2: interior diameter =$18\,mm$, exterior diameter = $28\,mm$, and length up to $30\,mm$) allow this experimental setup to be used over the desired range of pressure ($20\,mbar$ to $2\,bar$) and permeability (typically from 10^{-10} to $10^{-18} m^2$).

Depending of the sample and the measurement parameters (tank volume, sample geometry, and average pressure), the relaxation time ranges from a period of seconds to several hours. However, the curve shapes always depict a clear and orderly symmetrical evolution towards the average pressure. For samples with low permeability at low pressure, such a behaviour requires the system to be perfectly isolated from the atmospheric pressure: all connections use high vacuum technology, and the connections to the tanks or the sample support were either soldered or sealed using a sealing resin (Loctite 586).

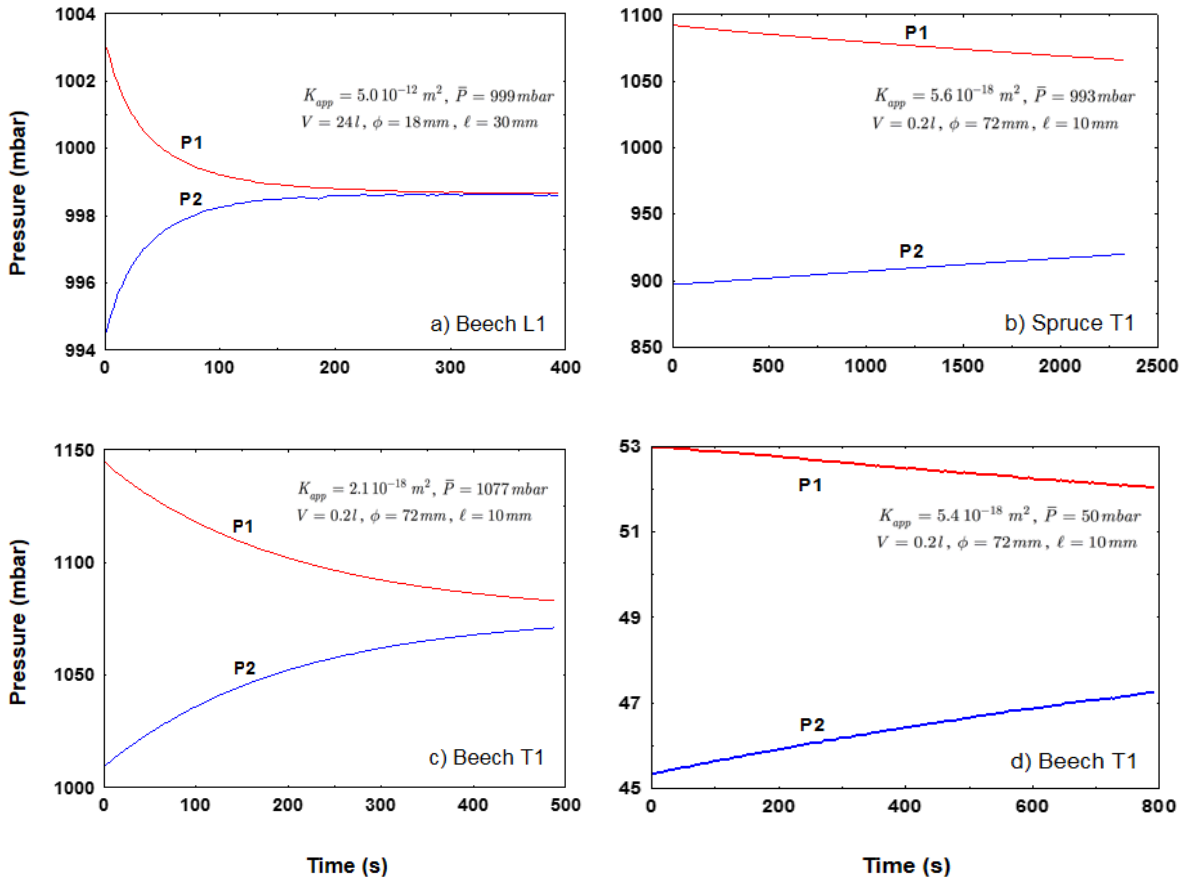

Figure 3 – Examples of pressure relaxation recorded for a set of contrasted samples: measurements over such a wide range of values required all parameters of the experimental device to be selected carefully: experiment time, sample geometry (using either support S_1 or S_2), sample thickness, and tank volumes.

Figure 3 depicts some examples of experimental data obtained for contrasted samples. A wide range of values can be measured provided that the configuration of the experimental device is carefully selected. For each test, the time constant of pressure relaxation τ is defined as follows:

$$\tau = \left. \frac{P_2 - P_1}{dP_1/dt} \right|_{t=0^+} \tag{6}$$

This time constant governs the thermal regime of the experimental device. This constant increases significantly when the mean pressure decreases. This is beneficial for highly permeable samples, but renders the determination of the apparent permeability at low mean pressure even more difficult for values with very low permeability.

Analysis of raw data

The apparent permeability K_{app} is determined using Darcy's law:

$$v_g = -\frac{K_{app}}{\mu_g}\nabla P \tag{7}$$

Integrating equation (7) along a sample of thickness ℓ, with the gas density expressed using the ideal gas law, and assuming temperature T to be constant, a rigorous expression of the volume flow Q can be obtained for any pressure gap imposed on the sample:

$$Q_m = A_{sample}\frac{K_{app}}{\mu_g}\frac{M}{RT}\frac{\left(P_1^2 - P_2^2\right)}{2\ell} \tag{8}$$

Obviously, this expression ensures a uniform mass flow Q_m through the sample. Introducing the gas average pressure, $\overline{P} = (P_1 + P_2)/2$, the experimental mass flow through the sample is given by:

$$Q_m = \frac{K_{app}\,A_{sample}}{\mu_g}\frac{\overline{P}M}{RT}\frac{(P_1 - P_2)}{\ell} \tag{9}$$

In order to deduce the permeability from Darcy's law, the key issue is then to obtain the flux through the sample from the pressure evolution. For most wood species, the permeability is quite low in the transverse plane, radial or tangential directions, with typical values in the range 10^{-15} to $10^{-18}m^2$. In such conditions, the experiment duration is of the order of an hour and the experimental system behaves in isothermal conditions. With the assumption of constant temperature, this mass flow depends only on the pressure variations:

$$Q_m = -V_1\frac{M}{RT}\frac{dP_1}{dt} = V_2\frac{M}{RT}\frac{dP_2}{dt} \tag{10}$$

Finally, a combination of equations (9) and (10), in the case of identical volumes ($V = V_1 = V_2$), gives the expression to be used to determine the apparent permeability from the experimental data in isothermal regime:

$$K_{app} = \frac{\mu_g V\,\ell}{A_{sample}}\frac{1}{2\overline{P}}\frac{d(\ln(P_1 - P_2))}{dt} \tag{11}$$

Using two tanks of equal volume, the average pressure $\overline{P}$ is constant throughout the entire experiment. Therefore, equation (11) tells us that the time derivative of $\ln(P_1 - P_2)$ should be constant. The apparent permeability is then simply deduced by the slope of the function $f(t) = \ln(P_1(t) - P_2(t))$ obtained by a linear regression.

Figure 4 depicts one typical example of experimental measurement (Norway spruce in the tangential direction). Several conclusions can be drawn from this example:

- Due to the choice of identical volumes, the average pressure remains constant during the measurements: $\bar{P} = 298.6 \pm 0.9\ mbar$. This remains valid as long as the initial pressure gap is much smaller than the mean pressure;
- Equation (11) holds, as $\ln(P_1 - P_2)$ plotted against time is perfectly linear;
- In spite of the very small pressure gap at the end of this experiment ($6.14\ mbar$), the curve only minimally becomes noisy (see the inset graph), which confirms the excellent quality of our pressure sensors.

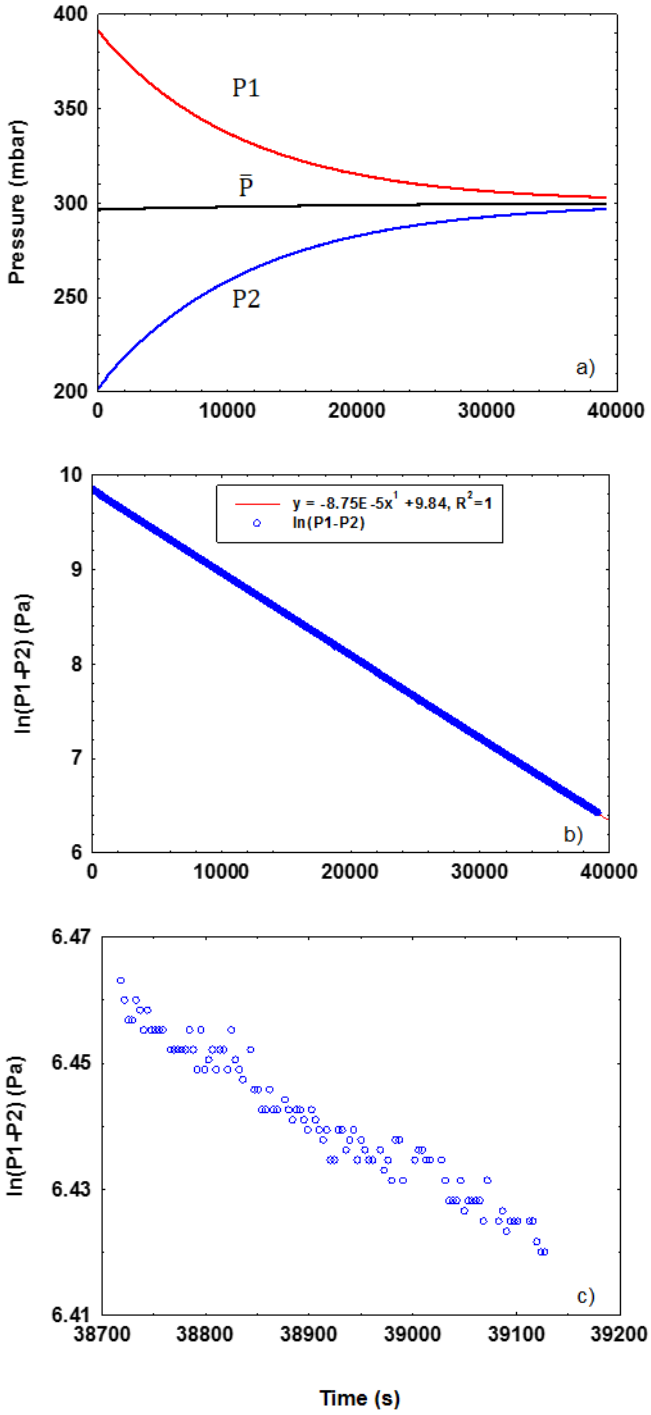

Figure 4 – Pressure relaxations of P1 (pressure in the upstream chamber) and P2 (pressure in the downstream chamber) as a function of time in the two gas chambers for a sample of Norway spruce in the tangential direction (a) and evolution of the logarithm of pressure difference, entire set of data (b), and zoom over the very last instants with very small pressure gap (c).

In the case of highly permeable samples, the simple assumption of isothermal regime fails. This is why a full computational model was derived to analyse experimental data in any real regime. The detail of this model and its computational solution are detailed in appendix. This

model is able to quantify the error done when assuming ideal conditions (Table 2) and permits the best strategy for data analysis to be derived:

- For samples of low permeability, an isothermal regime is assumed and K_{app} is simply computed using equation (11).
- For highly permeable samples, the full model is used to analyse experimental data. As this model requires the permeability value to compute the pressure evolutions, an inverse procedure was adopted. The objective function is the mean squared difference between the simulated and measured pressure evolutions (P_1 and P_2).

Table 2 – Examples of errors done if assuming ideal conditions ($V = 24l$, $\phi = 72mm$, $\ell = 10mm$).

	$K_{app}(m^2)$		
	10^{-11}	10^{-12}	10^{-13}
Isothermal regime ($\bar{P} = 20$ mbar)	2%	0.21%	0.01%
Isothermal regime ($\bar{P} =$ 1,000 mbar)	27%	26%	22%
Adiabatic regime ($\bar{P} = 20$ mbar)	45%	41%	40%
Adiabatic regime ($\bar{P} = 1{,}000$ mbar)	3%	4%	10%

Results and discussion

For each sample, we performed a series of measurements at different mean pressures and represent the apparent permeability as a function of reciprocal mean pressure. The entire set of experimental data collected under isothermal regimes is depicted in Figure 5.

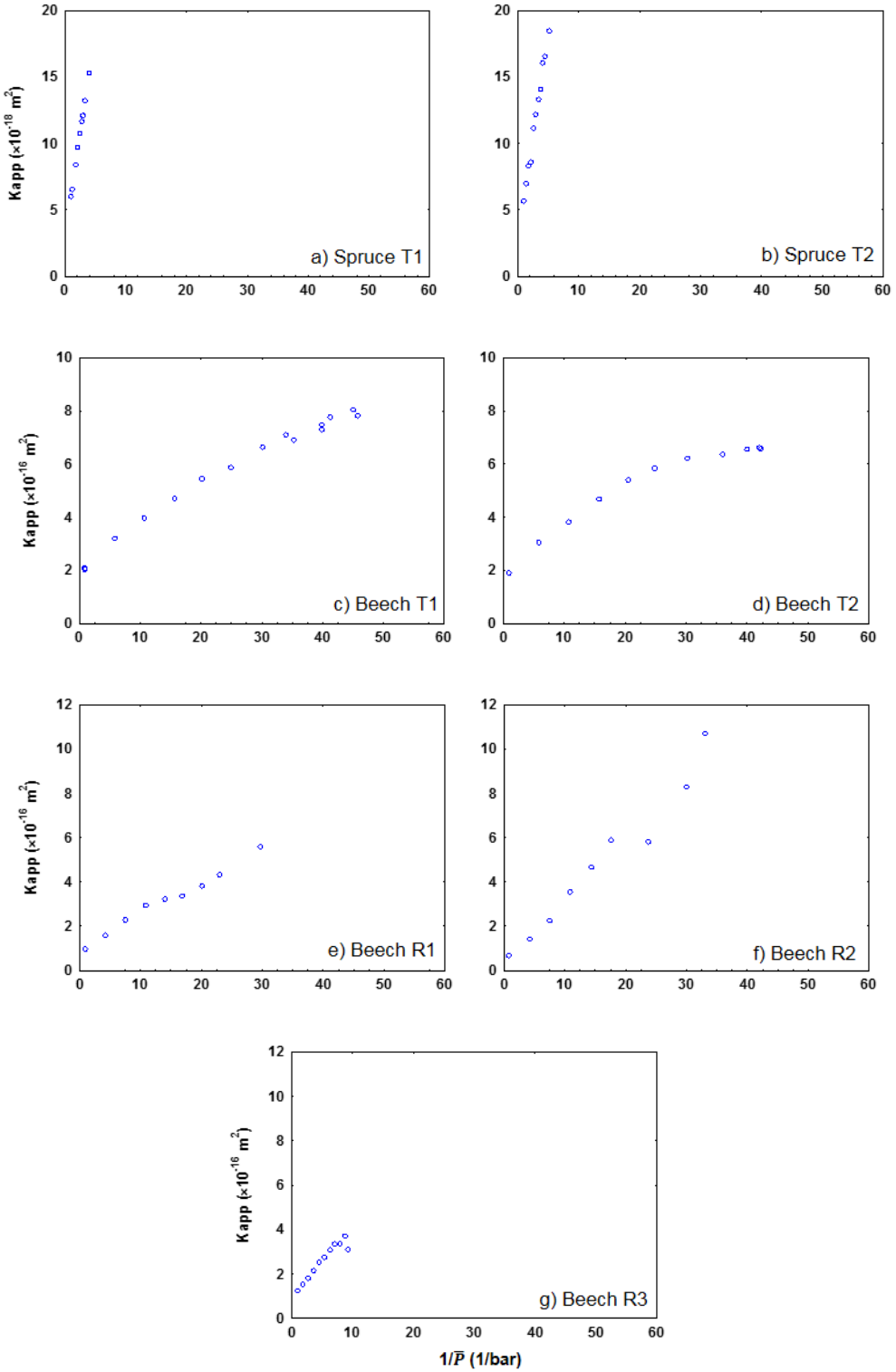

Figure 5 – The comprehensive set of experimental measurements. For each sample, the apparent permeability K_{app} is plotted versus the inverse of mean pressure of Norway spruce and European beech species in transverse directions under an isothermal regime.

Note that the measurement of spruce in radial direction has not been achieved, just because its permeability is beyond the range of our device (10^{-18} m²).

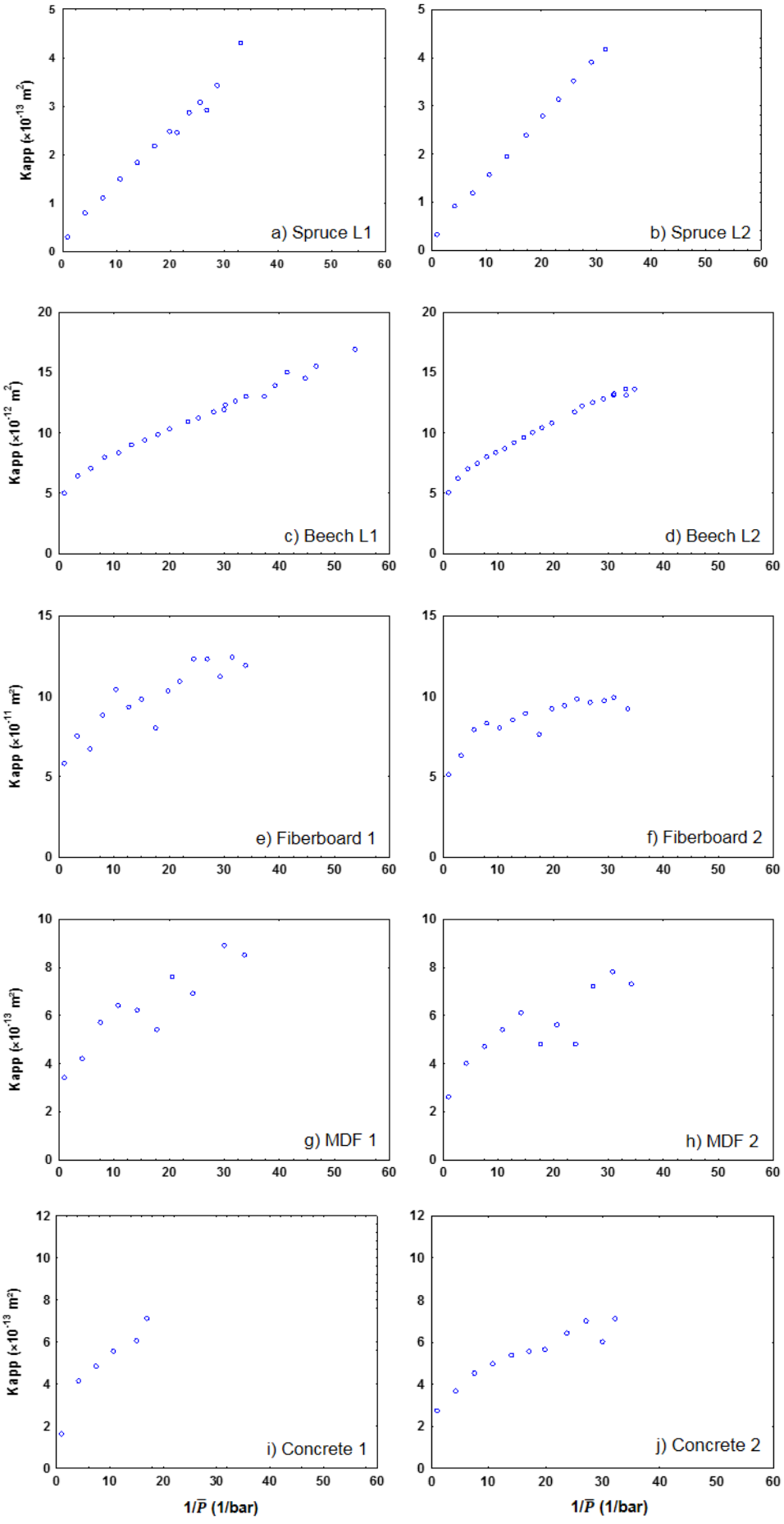
a) Spruce L1
b) Spruce L2
c) Beech L1
d) Beech L2
e) Fiberboard 1
f) Fiberboard 2
g) MDF 1
h) MDF 2
i) Concrete 1
j) Concrete 2
Kapp (×10⁻¹³ m²)
Kapp (×10⁻¹² m²)
Kapp (×10⁻¹¹ m²)
1/P̄ (1/bar)

Figure 6 – Apparent permeability plotted versus the inverse of average pressure. Results for permeable samples analyzed by inverse method with the numerical model.

Figure 6 completes the set of data for samples too permeable to obtain an isothermal regime. In these cases, the apparent permeability was determined by an inverse procedure (see appendix). One has to keep in mind that each single point of all of these graphs required one gas relaxation experiment to be performed.

The intrinsic permeability K_∞ is simply obtained by the intercept of the fitted straight line at the origin, whereas the slope of this line gives the value of the Klinkenberg's factor b (equ. 4). Table 3 summarises all data determined from our dataset: intrinsic permeability, factor b, and effective pore radius. The latter was determined using equation (5) with $c = 1$.

Table 3 – The whole set of experimental data

	Sample	$K_\infty\ (m^2)$	*b (Pa)*	$r\ (\mu m)^{1)}$
Norway Spruce	T 1	$2.86\ 10^{-18}$	$1.08\ 10^{05}$	0.246
	T 2	$2.67\ 10^{-18}$	$1.14\ 10^{05}$	0.233
	L 1	$2.25\ 10^{-14}$	$4.98\ 10^{04}$	0.535
	L 2	$2.65\ 10^{-14}$	$4.68\ 10^{04}$	0.568
European Beech	T 1	$2.29\ 10^{-16}$	$5.75\ 10^{03}$	4.63
	T 2	$2.61\ 10^{-16}$	$3.98\ 10^{03}$	6.68
	R 1	$9.78\ 10^{-17}$	$1.53\ 10^{04}$	1.73
	R 2	$2.90\ 10^{-17}$	$9.79\ 10^{04}$	0.272
	R 3	$1.10\ 10^{-16}$	$2.54\ 10^{04}$	1.05
	L 1	$5.89\ 10^{-12}$	$3.50\ 10^{03}$	7.61
	L 2	$5.89\ 10^{-12}$	$3.99\ 10^{03}$	6.67
Fibreboard	1	$6.72\ 10^{-11}$	$2.66\ 10^{03}$	9.87
	2	$6.58\ 10^{-11}$	$1.67\ 10^{03}$	15.69
Light concrete	1	$2.64\ 10^{-13}$	$1.02\ 10^{04}$	2.61
	2	$3.30\ 10^{-13}$	$3.65\ 10^{03}$	7.30
MDF	1	$3.89\ 10^{-13}$	$3.79\ 10^{03}$	7.02
	2	$3.35\ 10^{-13}$	$3.64\ 10^{03}$	7.31

[1)] The radius values were computed with $c = 1$.

For the spruce in the longitudinal direction, the intrinsic permeability is found to be $2.4\ 10^{-14}$ m² which is close to the permeability of Red spruce determined by Rice 1996 ($1.7\ 10^{-14}$ m²). For the beech in the longitudinal direction, the intrinsic permeability is found to be $5.9\ 10^{-12}$ m² which is in close agreement with measurements by Perré 2002, who found an average permeability in heartwood of beech of $5.14\ 10^{-12}$ m². The intrinsic permeability values found

here for spruce and beech agree also with previous measurements performed by one of the authors using a different experimental device (Tarmian and Perré 2009).

However, the real novelty lies in the effect of mean pressure for different directions of the same species. In the case of heartwood of spruce, the value of factor b found in tangential and longitudinal orientations is almost the same, in spite of 4 decades in terms of anisotropy ratio! Once converted into effective pore radius, the value found for spruce is equal to $0.24\,\mu m$ in the tangential direction and $0.54\,\mu m$ in the longitudinal direction. These values have to be compared with the largest of the small openings in the margo of bordered pits. Due to the propensity of bordered pits to be aspirated in earlywood, it is likely that the active part of dried spruce regarding fluid flow is in latewood (Panshin and de Zeeuw 1980, Domec and Gartner 2002, Almeida et al. 2008). These anatomical factors result in a reduced permeability in heartwood, usually with reduced apparent pit-pore sizes (Wang et al. 1996). Therefore, it is remarkable to notice that these orders of magnitude of pore size correspond to the pore opening between the margo microfibrils in latewood pits (Domec et al. 2006). This confirms that, whatever the flow direction, the resistance to the flow takes place in the same anatomical elements. These orders of magnitude of the pore size are also in good agreement with those determined indirectly from permeability and mass diffusivity values using a simple pore morphology (Agoua and Perré, 2010). The slightly higher pore radius found in the axial direction can be explained by the probability of connection of the largest pores: the pathway in the tangential direction enforces the gas flow to use a much higher number of pits, resulting in a much smaller probability to have a continuous pathway with large pores. In this sense, our results seem more consistent that those of Petty (1970) for Sitka spruce, who found a larger effective radius in tangential direction (ca. $0.6\,\mu m$) than in axial direction (ca. $0.14\,\mu m$).

In the case of heartwood of beech, the axial experiment depicts a pore radius of ca. $7\,\mu m$, which is also the typical size of scalariform openings that prevail between vessel elements in latewood. As simple perforations prevail in earlywood, this typical pore radius could also be the largest pore in intravascular pits, as these aligned pits can be elongated and even become scalariform (Jacquiot et al. 1973). Clearly, in this pore diffuse hardwood, the gas flow occurs mainly in the vessels and, inside these vessels, the resistance to the flow along the pathway in either scalariform perforations plates or intervascular pits, as the vessels themselves have a diameter ranging from 50 to 75 µm (Jacquiot et al. 1973, Perré and Karimi, 2002). The same order of magnitude is found in the tangential direction, which is a completely new result and suggests that the same openings are used in tangential flow. This confirms the assumption of intervascular pits, as such openings are required for the flow to advance along the tangential direction from one vessel line to the other. The tangential pathway could then consist of vessel lines interconnected to allow for a tangential progression at the cost of a huge tortuosity. The small number of possible pathways and the numerous intervascular pits required to progress along the tangential pathway could explain the large anisotropy ratio (longitudinal over tangential). The openings found in beech in the radial direction are smaller ($0.3\,\text{to}\,1.7\ mm$), which suggests that the fluid pathway involves different openings, probably

the openings in the large rays existing in beech or, most probably, the inter-cellular voids between ray cells (Wheeler et al. 1989).

Finally, the pore radius in fibreboard is also consistent with the structure of these panels: roughly $12\,\mu m$ in LDF and $7\,\mu m$ in MDF: the size of the pore radius between neighbouring fibres is of the order of the fibre diameter for a low density panel, but decreases due to the compression rate required to obtain the higher density of MDF.

Light concrete is known to have a structure of large pores (up to some millimetres) connected by much smaller openings, which is, again, consistent with the micrometric pore size found by using the slip flow as an indirect pore gauge. These results, including the intrinsic permeability values, are in good agreement with published works (Wägner et al. 1995).

The unique data set proposed in the present work deserves further analysis. Using semi-empirical relations originally established for simple porous media such as packed beds of particles, the factor *b* can be expressed as a function of the intrinsic permeability. According to the Carman-Kozeny equation (Carman 1937), Darcy's permeability can be expressed as a function of structural parameters:

$$K_\infty = \frac{\varepsilon\, r_h^2}{k} \tag{12}$$

where ε is the porosity of the sample, r_h is the hydraulic radius of the porous medium (defined as the free volume to wetted area ratio), and k is the so-called Kozeny constant. The analysis of a large volume of data on packed beds indicates that $k \simeq 5$, independent of particle's shape and bed's porosity from $\varepsilon = 0.26$ to $\varepsilon = 0.8$ (Happel and Brenner 1991).

Then, from expressions (5) and (12), assuming that $r_h \cong \left\langle r \right\rangle$, we get:

$$b \cong \left(\frac{64}{5} c\, \mu \sqrt{\frac{RT}{2\pi M}} \right) \sqrt{\frac{\varepsilon}{k}}\; K_\infty^{-1/2} \tag{13}$$

For air at $25°C$, assuming $c = 1$, $k = 5$, and $\varepsilon = 0.8$, the factor b is given approximately by:

$$b \cong 1.1\, 10^{-2}\; K_\infty^{-1/2} \tag{14}$$

Equation (14) tells us that factor b is larger for samples with lower permeability values. This trend is confirmed by experimental data. Several authors proposed similar relations to equation (14) but with adjusted coefficient and exponent to fit some experimental data:

$$b = \alpha K_\infty^{-\beta} \tag{15}$$

It appears that the values of constants α and β depend on the dataset in a quite moderate way (respectively 0.777 and 0.39 in Heid et al. 1950, 0.86 and 0.33 in Jones and Owens 1979, and

0.251 and 0.36 in Wu et al. 1998). The fitted power factor β is on the order of 0.35, slightly lower than the value 0.5 found in equation (13).

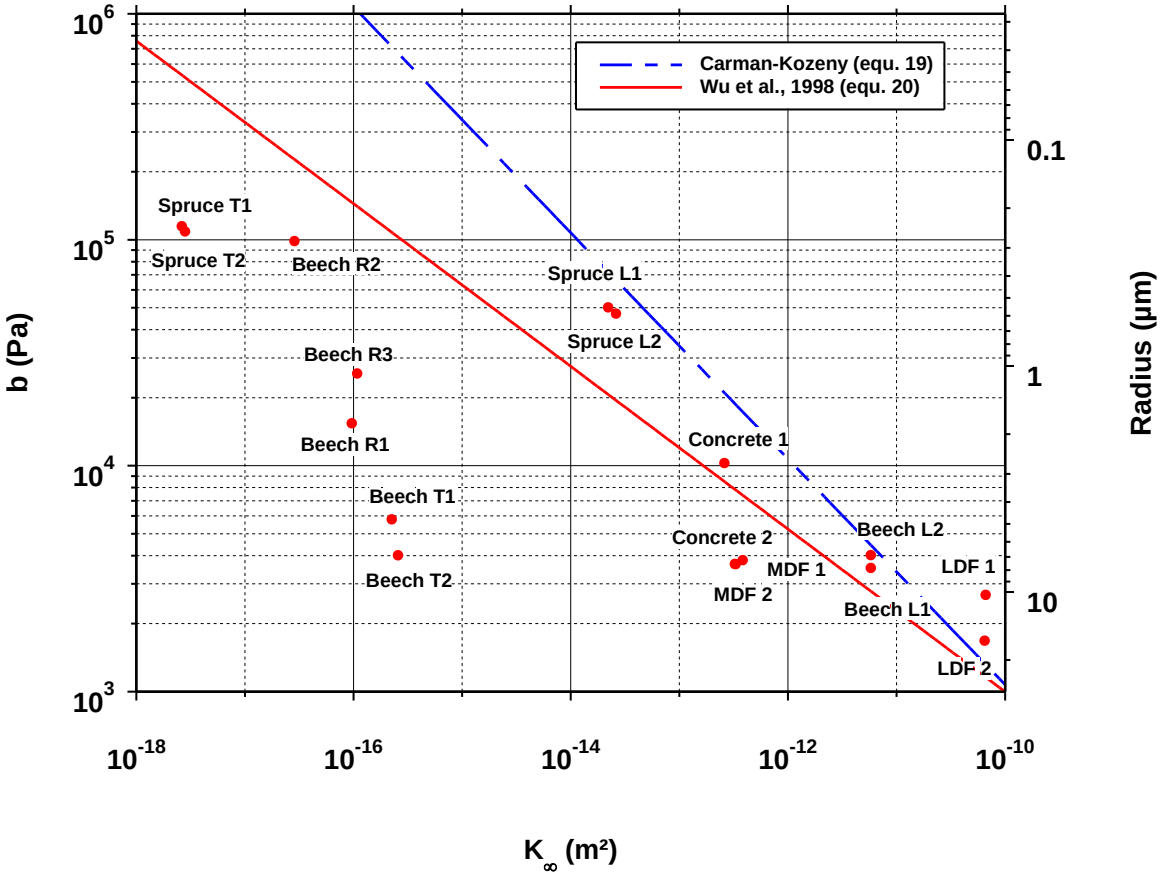

Figure 7 – The slip factor b plotted versus permeability for the whole set of samples tested in the present work. The effective pore radius is computed using equation (16) with $c = 1$.

Equations 14 and 15 suggest a nice way to synthesize our dataset in the same plot. Hence, Figure 7 presents the values of the slippage factor as a function of the intrinsic permeability for the materials investigated in the present work. The values of the intrinsic permeability are spread over 8 decades, from 10^{-10} to 10^{-18} m^2. This allows a useful comparison with the general expressions for factor b, semi-empirical (14) or empirical relation (15). These expressions give similar values for highly permeable media, but they predict a quite different trend for very low values of permeability. The overall trend found in our work is in quite accurate agreement with empirical expression (15). In particular, it is noticeable to observe that all of our samples from isotropic products (light concrete, LDF, and MFD) are almost exactly on this curve, in spite of the large permeability range, from 10^{-10} to 10^{-15} m^2.

Conclusion

A novel experimental device was designed to measure the apparent gaseous permeability over a wide range of mean pressure. Thanks to an inverse analysis based on a computational model, this device does not need any flow meter and is able to determine permeability over large ranges of mean pressure and permeability ($30\ mbar$ to $1\ bar$ and 10^{-10} to $10^{-18}\ m^2$). Experimental data were analysed for various porous media: two wood species in different material directions (Norway spruce and European beech), two wood-based panels, and one reference porous medium, autoclaved aerated concrete (AAC). The permeability values obtained for these wood and wood-based materials are in good agreement with published publications, but our large dataset with different directions over a large range of mean pressure is unique.

The slippage factors obtained for fibreboards are consistent with their structure, with an effective pore radius, of the order of fibre radii, which is reduced at higher panel density. New findings arose also for directional behaviour in wood:

- In spite of the huge anisotropic ratios found between the longitudinal and tangential directions, the effective pore size is the same and corresponds to anatomical features (openings in margo for spruce and scalariform perforation plates for beech);
- The pore size found for beech in the radial direction suggests that other openings are involved, certainly including openings in ray cells (pits or intercellular voids).

Nomenclature

A_{sample}	Surface area of sample	m^2
b	Klinkenberg's slip factor	Pa
c	Constant in equation (4)	(-)
c_p	Specific heat capacity	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
C_v	Heat capacity at constant volume	$J.K^{-1}$
h	Heat transfer coefficient	$W.m^{-2}.K^{-1}$
k	Kozeny constant	
K	Permeability	m^2
K_{app}	Apparent permeability	m^2
K_∞	Intrinsic permeability	m^2
K_n	Knudsen number	(-)
ℓ	Sample thickness	m
M	Molar mass	$kg.mol^{-1}$
n	Number of moles	mol
P	Pressure	Pa

$\bar{P}$	Average pressure	Pa
Q	Volume flow	$m^3.s^{-1}$
Q_m	Mass flow	$kg.s^{-1}$
r	Pore radius	m
$\langle r \rangle$	Effective pore radius (equation 4)	m
r_h	Hydraulic radius (equation 12)	m
R	Gas constant	$8.31446\ J.mol^{-1}.K^{-1}$
S	Entropy	$J.K^{-1}$
t	Time	s
T	Temperature	K
v_g	Apparent velocity of gas	$m.s^{-1}$
V	Tank volume	m^3
x	Coordinate across the sample thickness	m

Greek letters

α	Factor in equation (15)	$Pa.m^{2\beta}$
β	Exponent in equation (15)	(-)
γ	Ratio of specific heats	(-)
ε	Porosity	(-)
μ_g	Dynamic viscosity of gas	$Pa.s$
ρ_g	Density of gas	$kg.m^{-3}$
τ	Time constant of pressure relaxation	s
ϕ	Sample support diameter	m

Subscripts

int	Internal
ext	External
g	Gaz
$tank$	Tank
$wall$	Tank wall
1	Relative to tank 1
2	Relative to tank 2

APPENDIX

Model used to analyze experiment performed under non-isothermal regime

Further developments are needed when the temperature of the two tanks is not constant. From the definition of internal energy U and the value of heat capacity at constant volume for an ideal gas $(C_v = nR/(\gamma - 1))$, the entropy variation dS of an ideal gas can be expressed as a function of temperature and volume variations (dT, dV):

$$dS = \frac{nR}{\gamma - 1}\frac{dT}{T} + nR\frac{dV}{V} \tag{A1}$$

In equation (A1), the volume variation dV is simply determined using Darcy's law, equation (9), with the actual pressure gap. Additionally, the entropy variation is due to the heat flux between the reservoir walls and the gas. This heat flux is obtained using the internal heat transfer coefficient h_{int}:

$$dS = \frac{\delta Q}{T} = \frac{h_{int}A_{tank}(T_{wall} - T_g)dt}{T} \tag{A2}$$

Keeping in mind that the tank wall exchanges on both faces, the evolution of the wall temperature reads as

$$m_{wall}c_{p,wall}dT_{wall} = A_{tank}\left[h_{int}(T_g - T_{wall}) + h_{ext}(T_{ext} - T_{wall})\right]dt \tag{A3}$$

Equations (A1 to A3), together with Darcy's law, allow the temperature and volume increments over any small time step dt to be obtained. From these increments, the pressure variations dP_1 and dP_2 are simply computed using the derivative of the ideal gases law:

$$\frac{dP}{P} + \frac{dV}{V} = \frac{dT}{T} \tag{A4}$$

Equations (9) and (A1-14) were solved numerically to compute the evolution of pressure and temperature in tanks 1 and 2, using the following iterative algorithm:

- ✓ Set initial values
- ✓ Loop from $t = 0$ to τ
  - Compute dV_1 and dV_2 using Darcy's law (9) with current values of P_1 and P_2
  - Compute n_1 and n_2 using V_1 and V_2 with current values of T and P
  - Compute dS_1 and dS_2 using the heat exchanges (A2)
  - Substitute the previous values in (A1) to compute dT_1 and dT_2
  - Compute dP_1 and dP_2 using (A4)
  - Update the wall temperature using (A3)
  - Actualize the values P_1, P_2, T_1, T_2, for the mole numbers at time t
  - Update T_2 as mixture of n_2 at T_2 and dn at T_1 entered in V_2 during dt
  - $t = t + dt$
  - Save data
- ✓ End of loop

Remark: This formulation applies to a closed system (mole number n constant). Therefore, at each time t, the mole number is computed using volumes V_1 and V_2 and the current values of pressure and temperature. During the time increment dt, the flux through the sample simply changes the volume of the system. A Joule-Thomson expansion occurs in the porous media, so the gas entering volume 2 is supposed to be at temperature T_1 (assumption of ideal gas).

The solution can easily be modified to simulate an adiabatic ($dS = 0$) or an isothermic configuration ($dT = 0$, hence $dS = nRdV / V$).

Simulations in real conditions require the heat exchange coefficients (h_{int} and h_{ext}) to be determined. Due to the thermal inertia of the tank walls, the external heat transfer coefficient h_{ext} has little effect on the device behaviour and was fixed at $12\,W.K^{-1}.m^{-2}$. In contrast, the internal heat transfer coefficient h_{int}, which is a key parameter, was determined by inverse analysis. A simple experiment was performed for this purpose, in which the pressure evolution of both chambers was recorded in the absence of flux after a thermal perturbation. The latter was obtained by suddenly opening the by-path valve (V_5) in the presence of two different pressure values in volumes 1 and 2, which increased or decreased the temperature in volume of low or high pressure, respectively. A heat transfer coefficient of $4.3\,W.K^{-1}.m^{-2}$ was found for h_{int} (Figure A1).

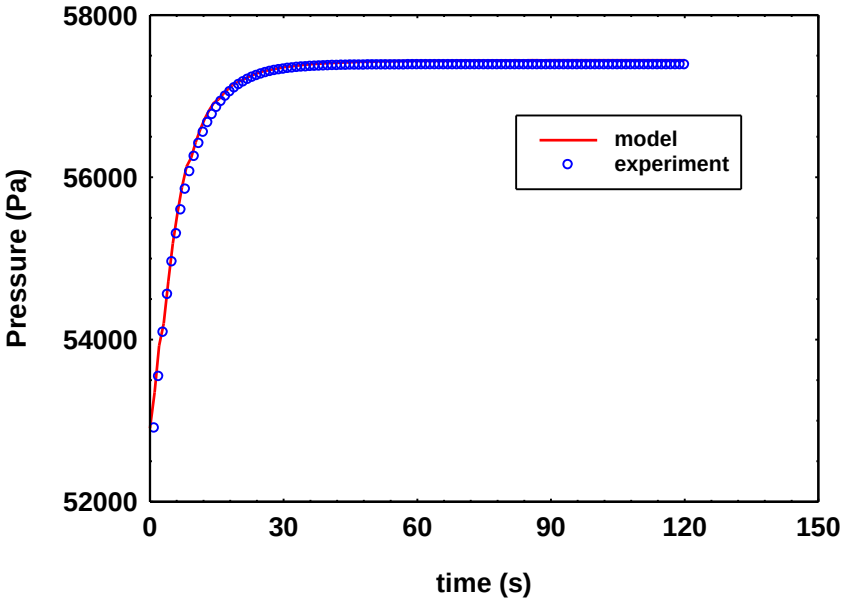

Figure A1 – Identification of the internal heat transfer coefficient using the evolution of the device without any flux after a thermal perturbation.

Figure A2 depicts a series of simulations performed at atmospheric pressure with the large tank volumes and the sample support S_2, designed for highly permeable samples. As expected, the adiabatic situation is always faster than the isothermic configuration, because, due to the absence of heat exchange, the tank temperature decreases in volume 1 (expansion) and increases in volume 2 (compression). Both effects act towards a reduction of the pressure gap. In the case of a highly permeable sample ($K = 10^{-11} m^2$, Figure A2a), the real configuration behaves as the adiabatic configuration at very short times, which is consistent. Very soon, the curve leaves the adiabatic behaviour: the decrease of the pressure gap evolves more slowly, crosses the isothermal curve, and eventually exhibits a slower evolution than the two ideal configurations. This is due to the inertia of the tank walls, whose temperature returns very slowly to the external temperature after the initial perturbation. This slow evolution is transferred to the gas and tends to maintain a pressure gap. The assumption of isothermal regime is confirmed for low permeable samples ($\leq 10^{-13}\ m^2$.).

The regime depends strongly on the test configuration. Our simulations tell us that the system is almost perfectly isothermal even for highly permeable samples, $K = 10^{-11} m^2$, when the measurement is performed at low pressure, $\overline{P} = 20\, mbar$. In contrast, it is almost adiabatic for a quite low permeability, $K = 10^{-13} m^2$, but with sample support S_1 at $\overline{P} = 1000\, mbar$.

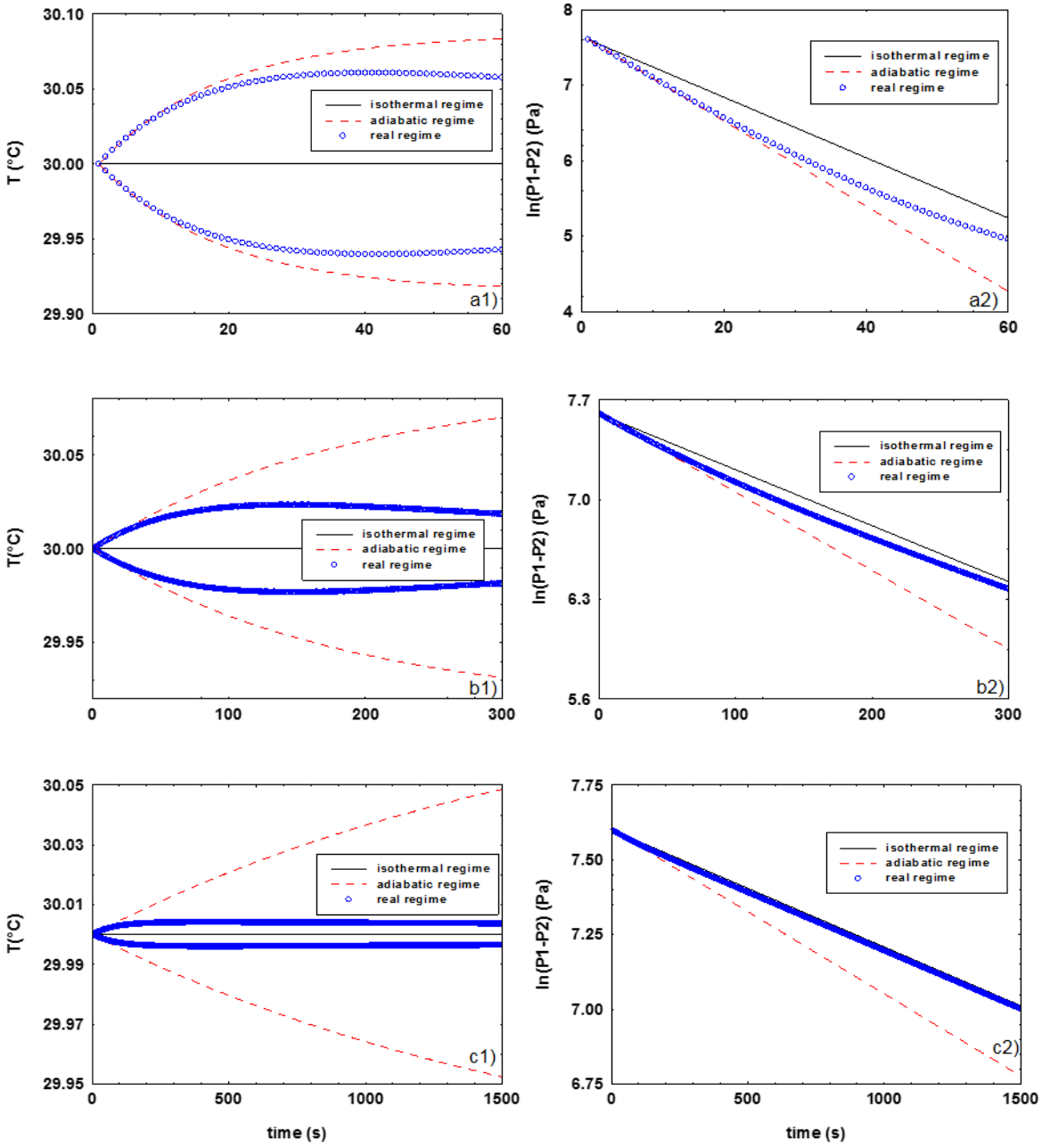

Figure A2 – Experiment simulation: evolution of temperatures and logarithm of pressure difference for $K_{app} = 10^{-11}, 10^{-12}\, and\, 10^{-13}\ m^2$ (subplots a1, a2, b1, b2 and c1, c2 respectively). $V = 24\,l$, $\phi = 18\,mm$, $\ell = 30\,mm$, and $\overline{P} = 1000\,mbar$.

References

Agoua, E., Perré, P. (2010) Mass transfer in wood: Identification of structural parameters from diffusivity and permeability measurements. J. Porous Media 13:1017-1024.

Almeida, G., Leclerc, S., Perré, P. (2008) NMR imaging of fluid pathways during drainage of softwood in a pressure membrane chamber. J. of multiphase flow 34:312–321.

Balantinecz, J.J. (1963) The influence of morphological factors upon liquid flow in Douglas-fir wood under pressure. M.S. thesis, Univ. of Wash.

Bolton, A.J., Petty, J.A. (1978) The relationship between the axial permeability of wood to dry air and to nonpolar solvent. Wood Sci. Technol. 12:111-126.

Cai, L., Oliveira, L.C. (2007) Gas Permeability of Wetwood and Normal Wood of Subalpine Fir in Relation to Drying. Drying Technology, 25(3): 501–505.

Carman, P.C. (1937) Fluid flow through granular beds. Trans. Inst. Chem. Eng. 15:150-166.

Chen, P.Y.S., Zhang, G., Van Sambeek, J.W. (1998) Relationship among growth rate, vesel lumen area, and wood permeability for three hardwood species. Forest Products Journal 48(3):87-90.

Choong, E.T., Kimbler, O.K. (1971) A technique of measuring water flow in woods of low permeability. Wood Sci. 4(1):32-36.

Choong, E.T., Tesoro, F.O., Manwiller, F.G. (1974) Permeability of twenty-two small diameter hardwoods growing on southern pine sites. Woods and Fiber 6(1):91-101.

Comstock, G.L. (1967) Longitudinal permeability of wood to gases and nonswelling liquids. Forest Prod. J. 17:41-46.

Comstock, G.L. (1970) Directional permeability of softwoods. Wood Fiber Sci. 1(4):283-289.

Coté, W.A. (1958) Electron microscope studies of pit membrane structure; implications in seasoning and preservation of wood. For. Prod. J. 8:296-301.

Domec, J.C., Gartner, B.L. (2002) How do water transport and water storage differ in coniferous earlywood and latewood. J. Exp. Botany 53:2369–2379.

Domec, J.C., Lachenbruch, B., Meinzer, F.C. (2006) Bordered pit structure and function determine spatial patterns of air-seeding thresholds in xylem of douglas-fir (*Pseudotsuga menziesii*; Pinaceae) trees. American Journal of Botany 93(11):1588–1600.

Dullien, F.A.L. (1992) Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure. Academic Press Inc., New York.

Happel, J., Brenner, H. (1991) Low Reynolds Number Hydrodynamics. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht.

Heid, J.G., McMahon, J.J., Nielsen, R.F., Yuster, S.T. (1950) Study of the permeability of rocks to homogenous fluids. In : Drilling & Production Practice. American Petroleum Institute, New York, 230-246.

Hirschfelder, J.O., Curtiss, C.F., Bird, R.B. (1954) Molecular theory of gases and liquids, John Wiley and Sons Inc., New York.

Jacquiot C., Trénard Y., Dirol D. (1973) Atlas d'anatomie des bois des angiospermes (essences feuillues). 2 volumes, CTB, Paris.

Jones F.O., Owens W.W. (1980) A laboratory study of low-permeability gas sands. J. Petroleum Technology 1631-1640.

Klinkenberg, L.J. (1941) The permeability of Porous Media to Liquid and Gases. In: Drilling & Production Practice. American Petroleum Institute, New York, 200-213.

Lihra, T., Cloutier, A., Zhang, S.Y. (2000) Longitudinal and transverse permeability of balsam fir wetwood and normal heartwood. Wood Fiber Sci. 32(2): 164-178.

Lu, J., Avramidis, S. (1999) Non-Darcian air flow in wood. Part 3. Molecular slip flow. Holzforschung 53:85-92.

Matsumura, J., Booker, R.E., Ridoutt, B.G., Donaldson, L.A., Mikajiri, N., Matsunaga, H., Oda, K. (1999) Impregnation of radiata pine wood by vacuum treatment II: effect of pre-steaming on wood structure and resin content. J. Wood Sci. 45(6):456-462.

Panshin, A.J., de Zeeuw, C. (1980) Textbook of wood technology. Structure, Identification, Properties and Uses of the Commercial Woods of the United States and Canada. McGraw-Hill, New York.

Perré, P. (1987) Measurements of softwoods permeability to air: importance upon the drying model. Int. Commun. Heat and Mass Transfer 14:519-529.

Perré, P., Agoua, E. (2002) Mass transfer in MDF (medium density fiberboards): identification of structural parameters from permeability and diffusivity measurements. 13th International Drying Symposium, Drying'2002, Vol. A 178-187, Beijing, China Drying.

Perré, P. (2007) Fundamentals of wood drying. COST E15 and ARBOLOR, Nancy.

Perré, P., Karimi, A. (2002) Fluid migration in two species of beech (*Fagus silvatica* and *Fagus orientalis*): a percolation model able to account for macroscopic measurements and anatomical observations. Maderas Ciencia Tecnologia 4:50-68.

Petty, J.A., Preston, R.D. (1969) The dimensions and number of pit membrane pores in conifer wood. In: Proc. Roy. Soc. Lond. B172: 137-151.

Petty, J.A. (1970) Permeability and structure of the wood of sitka spruce. In : Proc. Roy. Soc. Lond. B175: 149-166.

Petty, J.A., Puritch. G.S. (1980) The effect of drying on the structure and permeability of the wood of *Abies grandis*. Wood Sci. Technol. 14:49-62.

Redman, A., Bailleres, H., Turner, I., Perré, P. (2012) Mass transfer properties (permeability and mass diffusivity) of four Australian hardwood species. BioResources 7(3):3410-3424.

Rice, R.W. (1996) Longitudinal gas permeability measurements from eastern white pine, red spruce, and balsam fir. Wood and Fiber Science, 28(3): 301-308.

Rogério, M., Oliveira, G., Deiner, J., Calil, C. (2010) Permeability Measurements of Brazilian Eucalyptus. Mat. Res. 13(3): 281–286.

Siau, J.F. (1984) Transport processes in wood. Springer Verlag, New-York.

Tanaka, T., Kawai, Y., Sadanari, M., Shida, S., & Tsuchimoto, T. (2015). Air permeability of sugi (Cryptomeria japonica) wood in the three directions. Maderas. Ciencia Y Tecnología, 17(ahead), 17–28.

Taghiyari, H. (2013) Effects of heat-treatment on permeability of untreated and nanosilver-impregnated native hardwoods. Maderas. Ciencia Y Tecnología, 15(ahead), 183–194.

Tarmian, A., Perré, P. (2009) Air permeability in longitudinal and radial direction of reaction wood as compared to normal wood: compression wood of *Picea abies* and tension wood of *Fagus sylvatica*. Holzforchung 63:352–356.

Usta, I., Hale, M. (2006) Comparison of the bordered pits of two species of spruce (*Pinaceae*) in a green and kiln-dried condition and their effects on fluid flow in the stem wood in relation to wood preservation. Forestry 79:467-475.

Wägner F., Schober G., Mörtel H. (1995) Measurement of the gas permeability of autoclaved aerated concrete in conjunction with its physical properties. Cement and Concrete Research 25:1621-1626.

Wang, J., Dai, C., Liu, Y. (1991) Wood permeability. J. Northeast For. Univ. Vol. 2, No. 1.

Wheeler, E.A., Baas, P., Gasson, P.E. (1989) IAWA list of microscopic features for hardwood identification. IAWA Bulletin 10:219-332.

Wang, J.Z., DeGroot R. (1996) Treatability and durability of heartwood. National Conference on Wood Transportation Structures, U.S. Department of Agriculture, Forest Service, Forest Products Laboratory, Madison, WI, pp. 252-260.

Wu, Y.S., Preuss, K., Persoff, P. (1998) Gas flow in porous media with Klinkenberg effects. Transp. Porous Media 32:117-137.

IV. Identification de paramètres morphologiques du bois à partir de mesures de perméabilité au gaz

1. Introduction

Les résultats du chapitre 3 montrent qu'il est possible d'avoir une bonne idée de la taille effective des pores d'un matériau à partir de la mesure de sa perméabilité intrinsèque et du facteur de Klinkenberg.

Dans le chapitre 4, nous proposons d'aller plus loin en décrivant le matériau par un modèle de réseau de pores et en identifiant les paramètres morphologiques et topologiques de ce réseau. Ces paramètres sont déterminés à partir des variations de la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne du gaz, par minimisation de l'écart entre les valeurs de perméabilité déterminées expérimentalement et celles fournies par le modèle de réseau.

Dans un premier temps cette méthode est appliquée sur des matériaux dont la structure est contrôlée et connue. Il s'agit de membranes en polycarbonate dites « track-etched » dont les pores sont cylindriques et identiques. Il apparaît que si le régime d'écoulement du gaz dans les pores change dans la gamme de pression étudiée, il est possible d'identifier à la fois le rayon des pores et le nombre de pores par unité de surface. Les valeurs identifiées sont en bon accord avec celles mesurées par microscopie électronique à balayage.

Dans un deuxième temps, des échantillons d'épicéa ont été testés dans les directions longitudinale et tangentielle. Le modèle de réseau utilisé s'appuie sur la structure proposée par Comstock pour les résineux. Nous introduisons deux tailles de pores correspondant au lumen des trachéides et aux « trous » dans la marge des ponctuations aréolées. Le rayon des trous dans la marge des ponctuations aréolées est en bon accord avec les données anatomiques rapportées dans la littérature. Nous avons également identifié la fraction volumique de bois d'été ainsi que le nombre de trous par ponctuation aréolée. On note que la fraction volumique de bois d'été est surestimée alors le nombre de trous par ponctuation aréolée est sous-estimé. L'identification est rendue délicate par le fait que les perméabilités longitudinale et tangentielle dépendent principalement du produit de ces deux paramètres.

Nous envisageons de soumettre ce travail à Microfluidics and Nanofluidics ou à Transport in Porous Media.

2. Identification of wood's morphological parameters from gas permeability measurements

Wei AI[1], Hervé DUVAL[1*], Floran PIERRE[1] and Patrick PERRÉ[1]

[1] Laboratoire de Génie des Procédés et Matériaux, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, Châtenay-Malabry, 92290, France

[*]corresponding author, herve.duval@centralesupelec.fr, +33 141131731.

Abstract: We revisit a method developed to identify wood's morphological parameters. It is based on gas apparent-permeability measurements and takes advantage of the flow regime changes which occur at various pressures depending on the pore size.

In the present approach, the apparent permeability at a given mean pressure is determined from the pressure relaxation kinetics when gas is allowed to permeate through the tested material

from a slightly higher pressure compartment to a slightly lower pressure one. Our set-up is able to measure apparent permeability ranging from 10^{-10} to 10^{-18} m^2 at a gas mean pressure varying from 2 bar down to 35 mbar. The transient character of the experiments and the thermal regime of the gas evolution in the device are rigorously taken into account in the data analysis.

Morphological and topological parameters are then identified from the variations of apparent permeability as a function of the gas mean pressure using a pore network model. The network consists in elements such as pipes or orifices connected in series or in parallel. The unknowns are typically the connectivity of the network, the pipes or the orifices diameter. The rarefied gas flow in each element is described by the appropriate model. The unknowns are determined by minimizing the deviation between the experimental variations of the apparent permeability and the simulated ones.

The present approach was first applied to track-etched polycarbonate membranes. If flow regime changes occurred in the investigated pressure range, pore radius and pore density could be identified and were found in good agreement with electronic microscopy measurements. Softwood specimens were also investigated. We identified in particular the mean radius of the pores controlling wood permeability in the longitudinal and tangential directions. Its value is in good agreement with the data reported in literature.

Keywords: characterization, cellular tissue, pore network, rarefied gas dynamics.

1 Introduction

Wood is a fine example of biological porous medium. In conifers or softwood, sap is transported through microscale elongated cells called tracheids which run lengthwise with trunk and are interconnected via smaller valves called bordered pits (see Fig. 1(a-d)). The tracheid large aspect ratio eases longitudinal sap circulation. According to cohesion-tension theory (Dixon and Joly 1894), sap ascent is driven by capillarity and evaporation from leaves. Thus the sap pressure within the tree is typically lower than the atmospheric pressure and is even negative since most trees are more than 10 m high (Scholander *et al*. 1965). In the vascular system of the trees, the bordered pits not only ensure the connection between the tracheids but also prevent the living tree from embolism in the case of air intrusion (consecutive to injury or cavitation for example). Actually, if a gas/liquid interface passes through the pit, the capillary forces cause the flap of the valve to move into the so-called aspired position, closing off the water flow from embolized tracheids (gas-filled) to adjacent water-filled tracheids. As shown in Fig. 1(e-f), the valve consists in a disc-shaped membrane called torus attached to the pit chamber by microfibrillar strands forming the so-called annular margo. The openings between the strands permit the passage of sap when the pit is non-aspired. Otherwise, when the pit is aspired, the torus is pressed on the pit aperture (on the water-filled side of the bordered pit). When green wood is cut and naturally dried, many bordered pits are aspired as a consequence of the "anti-embolism" mechanism. Due to wood's physiology, pits are more easily aspired in earlywood, *i.e*. formed during spring, than in latewood, *i.e*. formed during summer (Phillips 1933, Almeida *et al*. 2008). A scanning electron micrograph of a transverse section of softwood (Fig. 1(b)) shows a typical abrupt transition between earlywood and latewood. It is seen that tracheid walls are thicker in latewood and the dimension of the cells in the radial direction is much smaller.

For more details about wood anatomy and physics, we refer the interested reader to Siau's book (1995).

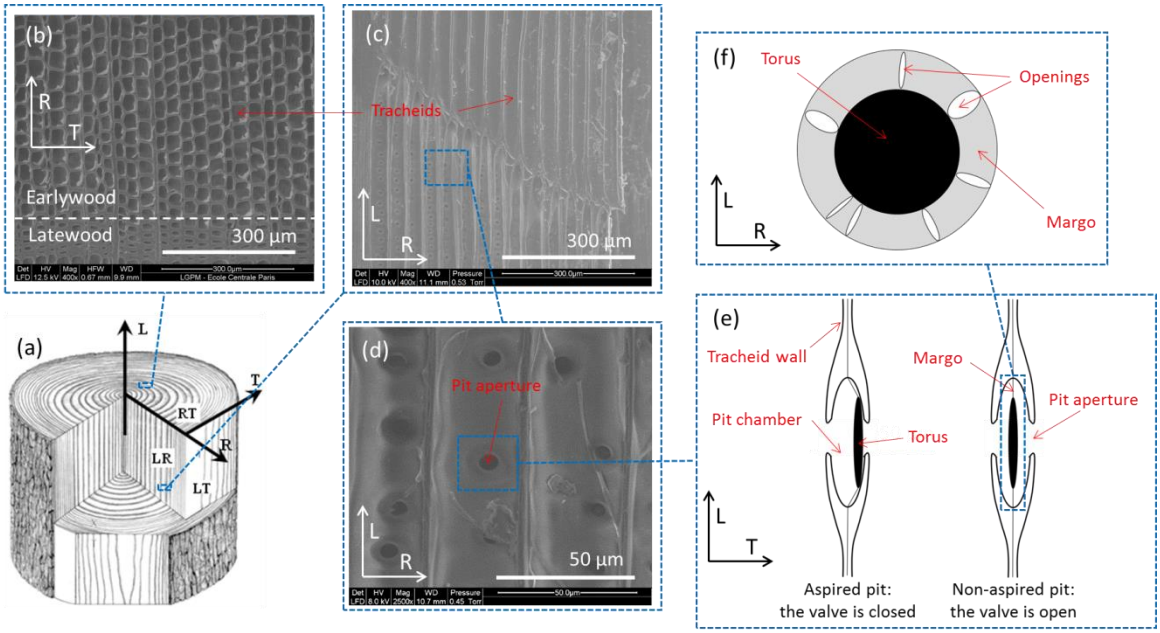

Fig. 1 Multiscale structure of softwood tissues: (a) the main directions of a wood log, (b) micrograph of Norway spruce's tracheids by ESEM in RT plane, (c) micrograph of Norway spruce's tracheids by ESEM in LR plane, (d) micrograph of bordered pits by ESEM in LR plane, (e) scheme in LT plane of a bordered pit in open and closed positions, (f) scheme in LR plane of the openings within the margo.

In dry wood, transport properties mainly rely on the tracheid network, especially on the conductive (*i.e.* non-aspired) bordered pits. These properties condition the heat and moisture transfers involved in many wood's transformation processes and uses. In order to better understand, predict and control these phenomena, a fine knowledge of wood's multiscale morphology is required. Wood may be characterized by serial cross-section analysis or micro-tomography. However, the nanoscale morphology such as the inter-tracheid pits remains difficult to be assessed with such methods.

An alternative approach developed by Petty and coworkers is based on the analysis of the gas apparent-permeability variations as a function of the gas pressure (Petty and Preston 1969, Petty 1970). The idea consists in taking advantage of the flow regime changes (from viscous flow to slip flow for example), which occur at different mean pressures depending on the pore size, in order to identify pore-network characteristics. We remind that the permeability measured by the Darcy test (see Fig. 2) is related to the fluid's volume flow rate Q by:

$$Q = -\frac{K_{\text{app}}\, A}{\mu}\frac{dP}{dx} \qquad (1)$$

where μ is the gas dynamic viscosity, A is the porous medium cross-section area and dP/dx is the pressure gradient in the flow direction x. K_{app} is the so-called apparent permeability which coincides with the intrinsic permeability in the viscous regime, *i.e.* when the gas mean free path,

λ, is small compared to the pore radius r characteristic of the medium. Under hard sphere gas approximation, λ is given by (Hirschfelder *et al*. 1954):

$$\lambda = \frac{16\mu}{5P}\sqrt{\frac{RT}{2\pi M}} \qquad (2)$$

where R is the ideal gas constant, M the molar mass of the gas and T its temperature. However, when the Knudsen number, $\mathrm{Kn} = \lambda/r$, increases (typically from 10^{-2} and beyond), gas slippage in the pores increases, leading to higher apparent permeabilities.

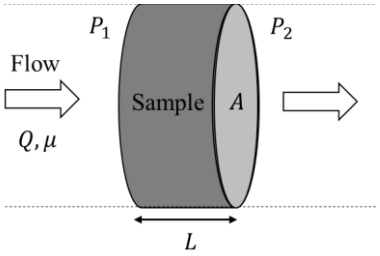

Fig. 2 Schematic of the Darcy test. μ is the fluid viscosity, Q is the volume flow rate, P_1(resp. P_2) is the inlet (resp. outlet) pressure, A is the sample cross-section area and L its length in the mean flow direction.

Petty's apparatus consists in measuring the gas volume flow rate that permeates through a porous medium sample connected upstream to an expansion valve and a chamber maintained at the atmospheric pressure and downstream to a vacuum reservoir. Tests are carried out at a given initial pressure difference across the sample but at various initial downstream pressures. Gas volume flow rates are measured at atmospheric pressure upstream of the expansion valve. Strictly speaking, the gas flow is transient during a test since the setup behaves as a closed system. However it is usually possible to define a time interval where the gas flow is quasi-steady and to perform the measurements in that window.

The measurements were typically analyzed in Adzumi's framework (Adzumi 1937). In the simplest approach (Sebastian *et al*. 1965), the resistance of the tracheids was neglected and conductive pit openings were assumed to solely control wood permeability. The pit opening network was modelled by identical cylindrical pores connected in parallel and in series. Using Adzumi's equation established for a single pore, the gas volume flow rate passing through a sample can then be expressed as:

$$Q_a = \frac{N\pi r^4 P_m A\Delta P}{8\mu P_a L_c} + \varphi\frac{4}{3}\sqrt{\frac{2\pi RT}{M}}\frac{Nr^3 A\Delta P}{P_a L_c} \qquad (3)$$

where Q_a is measured at the pressure P_a (in Petty's setup, P_a is the atmospheric pressure), ΔP is the pressure difference across the sample, P_m is the mean pressure in the sample, r is the pit opening effective radius and N is the number of conductive pit openings per unit cross-sectional area. L_c is the cumulative pore length estimated by $L_c \approx e(L/l)$. e is the margo thickness corresponding to the length of a single pore. L/l is the ratio of the sample length in the flow

direction to the tracheid dimension in that direction. φ is a coefficient depending on the Knudsen number. Adzumi's experiments showed that for a single gas, φ varies between 1 and 0.9 depending on the gas pressure (Adzumi 1937). Thus Adzumi's equation is essentially the superposition of two flows, *i.e*, a viscous flow (first term of the right hand side of Eq. 3) and a Knudsen flow (second term of the right hand side of Eq. 3 weighted by φ). Sebastian *et al*. (1965) applied their model to the wood of white spruce: experimental data were represented in a so-called Adzumi plot, *i.e*. $Q_a P_a L/\Delta P$ as a function of P_m. Plots were linear in accordance with Eq. 3. The pit opening effective radius r and the number of conductive pit openings per area unit N could be deduced from the intercept and the slope of the curve. However, in many softwood species, it appears that the plots are curvilinear rather than linear. Petty and coworkers explained this behavior by the low but non-negligible resistance of the tracheids in series with the high resistance of the pit openings. Thus they further extended Sebastian's approach to take into account both contributions and could identify not only the pit opening radius and the number of conductive pit openings per unit cross-sectional area but also the tracheid radius and the number of conductive tracheids per unit cross-sectional area.

This characterization method was extensively used by Petty and coworkers, mostly in the seventies (see the references in the article of Lu and Avramidis 1999). It greatly contributed to understanding softwood permeability and identifying the conductive pit openings as the limiting step along the flow pathway.

Gas permeability measurement and analysis is also an important and recurrent topic in petroleum and geophysical engineering. Klinkenberg (1941) first studied the effect of gas slippage in porous media (also named Klinkenberg effect) and proposed a correction for the apparent permeability with respect to the intrinsic one:

$$K_{\text{app}} = K_\infty \left(1 + \frac{b_k}{P_m}\right) = K_\infty (1 + 4c\text{Kn}) \qquad (4)$$

with b_k the Klinkenberg slip coefficient and c a factor close to 1. It should be noted that recasting Adzumi's equation leads to a similar relation with $c = \varphi/3$. The original issue was to estimate the intrinsic permeability or liquid equivalent permeability of porous rocks from gas permeability measurements (Klinkenberg 1941, Florence *et al*. 2007). Another issue emerged recently concerning the extraction of hydrocarbon gases from unconventional gas reservoirs such as shale-gas and coal-bed methane reservoirs. It gives rise to a lot of studies in modelling gas flow in tight porous media (Florence *et al*. 2007, Civan 2010). These studies take advantage of the advances in rarefied gas theory in the last fifty years and of its more recent development in the frame of micro- and nanofluidics. Since Klinkenberg's correction is only valid in the slip flow regime, several authors proposed new models in order to extend the validity of the permeability correction to higher Knudsen numbers (corresponding to transition and free molecular regimes). In particular we mention Civan's work (2010) based on Beskok and Karniadakis's equation for volumetric gas flow through a single pipe (1999) and the more recent work of Lv *et al*. (2014) based on Brenner's theory of bivelocity hydrodynamics (2005).

In the present study we developed an innovative in-house experimental apparatus able to measure gas permeability of porous media over a wide range of permeability values (from

10^{-10} to 10^{-18} m^2) and a large range of gas mean pressure (from 2 bar down to 35 mbar). Measurements rely on accurate pressure sensors instead of gas flowmeters as in standard methods. The transient character of the experiments is rigorously taken into account in the data analysis and the apparent permeability is determined from the pressure relaxation kinetics on either side of the tested samples. The permeability estimation may be carried out either under isothermal assumption or under non-isothermal assumption depending on the pressure relaxation characteristic time. Then morphological parameters are identified from the variations of the apparent permeability as a function the reciprocal mean pressure using a pore network model.

In the following sections, we first describe our experimental setup. We then report measurements performed on well-defined porous materials, *i.e.* polycarbonate track-etched membranes, and on a well-documented softwood species, *i.e.* Norway spruce. Finally, we present the identification approach and apply it to our experimental datasets. The values of the identified morphological parameters are compared to imaging results and literature data.

2 Materials and methods

2.1 Sampling

Specimens of ultrafiltration membranes and Norway spruce (*Picea abies*) were used in this study.

The membranes are commercialized track-etched polycarbonate membranes (Whatman Nuclepore membranes 80 nm and 10 µm, GE Healthcare Life Sciences) purchased from Fisher Scientific. These membranes are symmetric and have controlled cylindrical pores. For the 80 nm (resp. 10 µm) track-etched membranes, the pore nominal radius is equal to 40 nm (resp. 5 µm), the nominal mean pore density is equal to 6 10^8 pores/cm^2 (resp. 10^5 pores/cm^2) and the nominal membrane thickness to 6 µm (resp. 10 µm) as specified by the manufacturer. For the 80 nm (resp. 10 µm) membranes, disc samples with a diameter of 37 mm (resp. 8 mm) were cut and used for the permeability measurements.

Wood samples were excised from a plank of Norway spruce with narrow and even annual rings (resonance wood "quality"). The plank (taken from the heartwood zone of the wood log) comes from a tree cut in the Risoux forest in the east of France. Spruce specimens were dried under natural condition. The tested material had an average basic wood density (oven-dry mass to green volume) of 360 $kg.m^{-3}$.

Due to the large aspect ratio of the wood cells, wood is a strongly anisotropic material and three main directions emerge, *i.e.* longitudinal, radial and tangential directions (see Fig. 1). In the present study, sampling was performed in longitudinal and tangential directions. We prepared two samples per direction. They are denoted L1 and L2 (resp. T1 and T2) in longitudinal (resp. tangential) direction. The shape of the samples is adapted to the wood permeability in the corresponding direction. Hence in the longitudinal direction, characterized by high permeability values, rod samples with a diameter of 18 mm and a thickness of 30 mm were cut. In the tangential direction, characterized by low permeability values, disc samples with a diameter of 72 mm and a thickness of 10 mm were cut. In order to avoid lateral leakage during permeability

measurements, a surface prone to impervious contact with the rubber tube (see the experimental apparatus section) is required. This is obtained by coating the lateral surface of the sample with two successive layers of epoxy resin.

2.2 Characterization by scanning electron microscopy

The track-etched membranes were observed with an environmental scanning electron microscopy (ESEM, FEI Quanta 200) in high vacuum mode after the deposition of a nanometer thick gold film (using EMITECH K550 coating system). The micrographs (see an example in Fig. 3) were analyzed using the public domain software ImageJ (Rasband 2014) in order to determine the mean pore radius and the mean pore density of the membranes. For the 80 nm (resp. 10 µm) membranes, the measured mean pore radius is equal to 39 nm (resp. 4.4 µm) with a standard deviation of 5 nm (resp. 0.5 µm). The measured mean pore density is equal to $5.9 \pm 0.7\ 10^8$ pores/cm^2 (resp. $8.6 \pm 0.1\ 10^4$ pores/cm^2). The measured membrane thickness is equal to 4.2 ± 0.5 µm (resp. 9.8 ± 1.4 µm). These values concord with the specifications given by the manufacturer.

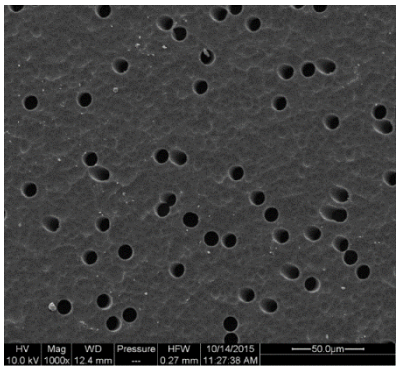

Fig. 3 Micrograph of a 10 µm track-etched membrane (Whatman Nuclepore) by ESEM.

Norway spruce specimens were carefully cut using a microtome after a two-days immersion in distilled water. They were then dried under natural conditions before being observed by ESEM in low vacuum mode. Typical micrographs of radial and transverse sections are presented in Fig. 1. We measured the dimensions of the tracheids on transverse sections. In earlywood, the mean tracheid radial dimension ($w = 44.5 \pm 4.7$ µm) is slightly greater than the mean tracheid tangential dimension ($l = 30.1 \pm 6.2$ µm) and the equivalent radius (pipe's radius keeping the same cross-section area) of the tracheid lumen is equal to 14.8 µm with a standard deviation of 1.8 µm. In latewood, the mean tracheid tangential dimension ($l = 30.6 + 4.6$ µm) is about the same as in earlywood but the mean tracheid radial dimension is significantly lower, *i.e.* $w = 17.0 \pm 3.3$µm. Furthermore the cell walls are thicker. As a consequence, the equivalent radius of the tracheid lumen in latewood is narrower and equal to 5.1 µm with a standard deviation of 1.9 µm. Lastly the mean aperture radius of the bordered pits is equal to 3.0 µm with a standard deviation of 0.3 µm. These values concord with the data reported by Brändström for Norway spruce (2001).

2.3 Experimental apparatus

An in-house device was designed to measure gas apparent permeability over a wide range of permeability values and average pressure. The principle of the measurement consists in imposing a pressure difference across the tested sample and calculating its permeability by determining the flow rate from the pressure relaxation kinetics. The apparatus and the experimental protocol are described in details in another paper (Ai *et al*. 2016). Thus we presently give only the outline.

As shown in Fig. 4, the device is composed of two rigid tanks of identical volume built in series with a sample support. One tank, *i.e*. the high pressure one (characterized by the pressure P_1), is also connected to a compressed gas cylinder whereas the other one, *i.e*. the low pressure tank (P_2), is connected to a vacuum pump. Each component of the system is separated by vacuum slide valves. The gas pressure in the tanks is measured by highly sensitive pressure sensors (GE Druck, TERPS RPS/DPS 8000). The pressure range of the sensors extends from about 0 to 2000 mbar with a precision of 0.2 mbar between 35 mbar and 2000 mbar at 25 °C. The device is completely air-tight. Furthermore, it is placed in a temperature-controlled chamber (accuracy $\pm$0.5°C, standard deviation 0.04°C). For all tests reported in the present paper, the temperature of the chamber was set at $T_0 = 20$°C.

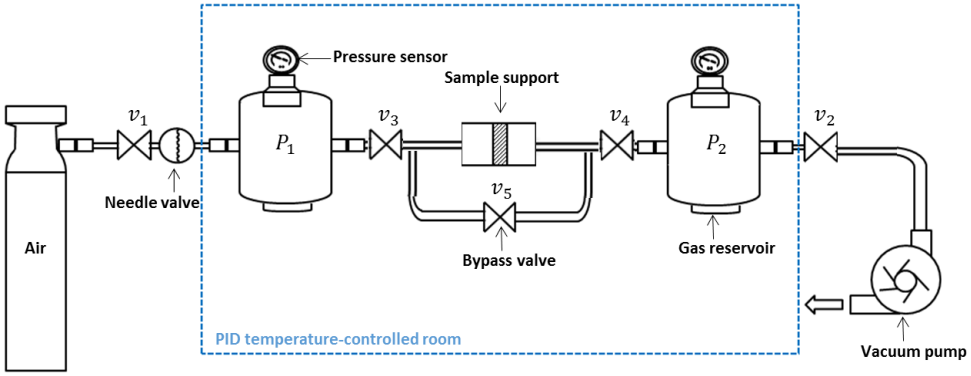

Fig. 4 Experimental device.

Two sets of tanks ($V = 0.2$ L and $V = 24$ L) are available as well as three sample supports fitting three sample geometries, *i.e*. rod or disc for the wood specimens and sheet for the track-etched membranes. The tanks volume and the sample geometry (for the wood specimens) are selected according to the expected sample permeability: rod shape and big tanks (resp. disk shape and small tanks) for highly (resp. slightly) permeable materials.

The sample supports rely on the ALU-CHA system developed by Agoua and Perré (2010). It is essentially a tube-in-tube system with an inner rubber tube mounted coaxially in an aluminum hollow shell. The shell side may be connected either to a pump or to a compressed air system. The sample is inserted in the rubber tube after pumping the air from the shell. If the sample is rigid, it is inserted as it is, otherwise it is first mounted on a rigid frame. An overpressure of more than 2 bar is then applied at the shell side to ensure air tightness around the sample during measurements.

We measured the intrinsic leak rate of our setup at the lowest mean pressure of our experiments using a PVC (polyvinylchloride) impermeable sample: the leak rate is of 0.2 mbar/h at mean pressure of 30 mbar for the small tanks and is of 0.7 mbar/h at mean pressure of 30 mbar for the big ones. These values remain much lower than the pressure relaxation rates typically measured in the present study.

The measurement protocol begins by setting the two tanks at similar but different pressures ($P_1 > P_2$). At this stage, valves v_3 and v_4 are closed. Small initial pressure difference $\Delta P = P_1 - P_2$ of a few mbar are preferred. However, for slightly permeable materials, long measurement times are required and ΔP up to 100 mbar may be necessary for the "intrinsic" leak rate of the set-up to remain negligible compared to the measured pressure relaxation rates. Then, after thermalization, v_3 and v_4 are opened and the gas is allowed to permeate through the sample from the high pressure tank to the low pressure one. The pressure variations in both tanks are recorded as a function of time. Experiments are carried out at various initial mean pressures $P_m = (P_1 + P_2)/2$.

3 Results

3.1 Pressure relaxation

A typical example of pressure relaxation curves as a function of time is reported in Fig. 5. Experimental data correspond to Norway spruce in the tangential direction. It can be seen that the pressures of the high and low-pressure tanks, *i.e.* P_1 and P_2, respectively, relax symmetrically toward the mean pressure $P_m = (P_1 + P_2)/2$ since the gas tanks have the same volume.

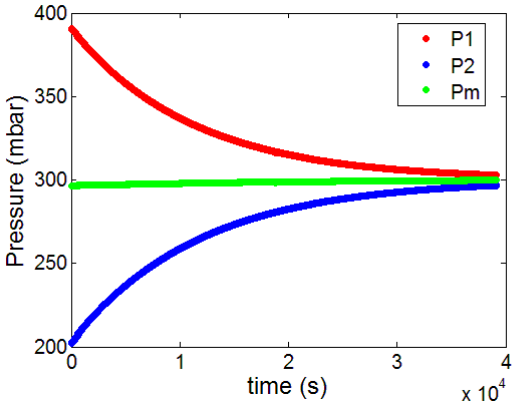

Fig. 5 Pressure relaxations in the two tanks for a Norway spruce sample in the tangential direction at the mean pressure $P_m = 299$ mbar.

The duration of an experiment may vary over several orders of magnitude, *i.e.* from a few seconds for the 10 µm track-etched membranes to about 10^5 s for Norway spruce in the tangential direction. In Fig. 5, the pressure relaxation through the sample is almost complete. Although complete relaxation is not necessary to access apparent permeability, this experiment shows that the relaxation curves look like exponential (we will return to this point later). Furthermore, it can be seen that the intrinsic leak rate of the set-up remains low throughout this

long experiment. Actually, the mean pressure "drift" remains small compared to the pressure relaxation rate.

From the pressure relaxation curves, we can define the pressure relaxation characteristic time as:

$$\tau_R = \left. \frac{P_2 - P_1}{dP_1/dt} \right|_{t=0^+} \qquad (5)$$

For the experiments carried out on the 80 nm (resp. 10 µm) track-etched membranes with the big tanks, the pressure relaxation time τ_R varies from about 60 s at 30 mbar down to about 40 s at 2000 mbar (resp. from 30 s at 30 mbar down to 4 s at 1000 mbar). For Norway spruce in longitudinal (resp. tangential) direction with the big (resp. small) tanks, the pressure relaxation time varies from $2\ 10^4$ s at 30 mbar down to $5\ 10^3$ s at 1000 mbar (resp. from $1.2\ 10^4$ s at 200 mbar down to $6\ 10^3$ s at 1000 mbar). It should be noted that the relaxation time increases for decreasing pressure values since the perfect gas compressibility scales as the inverse of the pressure. This effect overpowers the increase in apparent permeability for decreasing pressure values. The characteristic time of the heat transfer between the gas and the tank wall may be (over)estimated by the gas conduction time $\tau_{\mathrm{cd}} = \nu/L_T^2$ with ν the kinematic viscosity of the gas at the corresponding pressure and L_T the tank characteristic dimension. For the big (resp. small) tanks, τ_{cd} varies from 50 s at 35 mbar up to $1.5\ 10^3$ s at 1000 mbar (resp. from 2 s up to 60 s). Thus we deduce that for the measurements performed on Norway spruce (in both directions), the gas evolution in the tanks is essentially isothermal at T_0 at the experiment timescale. On the contrary, for the measurements performed on the track-etched membranes, we expect that the gas evolution in the tanks is non-isothermal at the experiment timescale. It should be noted that in that case the tanks walls may be considered as isothermal at T_0 since their thermal inertia is very large compared to the inertia of the gas enclosed in the setup.

3.2 Determination of the apparent permeability

Let us consider a pressure relaxation test at the mean pressure P_m. We suppose that the gas flow within the sample is quasi-steady (the residence time of the gas in the sample is typically much lower than the characteristic time τ_R) and spatially isothermal at T. Thus Eq. 1 holds. Expressing the gas volume flow rate $Q(x,t)$ as a function of the molar flow $J(t)$, the temperature $T(t)$ and the pressure $P(x,t)$ and integrating Eq. 1 over the sample thickness L lead to:

$$K_{\mathrm{app}} = \mu \frac{2J(t)RT(t)L}{A(P_1^2(t) - P_2^2(t))} \qquad (6)$$

We used two methods to determine K_{app} at P_m corresponding to the two limiting cases of the gas pressure relaxation in the tanks, *i.e.* isothermal and non-isothermal.

3.2.1 Isothermal regime

If the pressure relaxation in the tanks is slow enough ($\tau_R \gg \tau_{\mathrm{cd}}$), we may suppose that the temperature of the gas remains always close to the set-point temperature T_0 of the chamber.

This corresponds typically to Norway spruce in longitudinal and tangential directions. Then the gas volume flow rate reads:

$$Q(t) = V\frac{dP_1/dt}{P_1(t)} \qquad (7)$$

where V is the volume of each tank. The conservation of the gas enclosed in the setup then leads to:

$$\frac{dP_1}{dt} = -\frac{dP_2}{dt} \qquad (8)$$

The pressure relaxation rates in the tanks are equal but opposite. By combining Eq. 6 to 8 we get the apparent permeability at a given mean pressure P_m as a function solely of the measured pressures:

$$K_{\text{app}} = \frac{\mu VL}{2A\,P_m}\left|\frac{d\ln(P_1 - P_2)}{dt}\right| \qquad (9)$$

Eq. 8 and 9 explain the symmetrical exponential relaxations observed in Fig. 4 for the gas pressures P_1 and P_2. Furthermore Eq. 9 shows that in isothermal regime, the pressure difference logarithm varies linearly with time. In this case we thus determine K_{app} by linear regression of the $\ln(P_1 - P_2)$ data as a function of time. A typical example of the variations of the pressure difference logarithm with time is reported in Fig. 6 for a Norway spruce sample in longitudinal direction at $P_m = 50$ mbar. We can see that the data are aligned along a straight line characteristic of isothermal regime. For this test, we find by linear regression $K_{\text{app}} = 2.47\ 10^{-13}$ m^2.

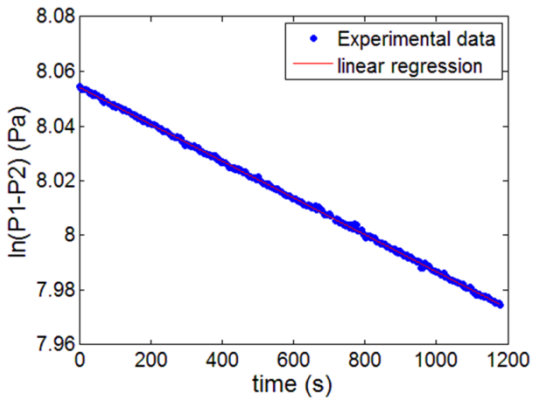

Fig. 6 Evolution of the pressure difference logarithm $\ln(P_1 - P_2)$ as a function of time for a Norway spruce sample in longitudinal direction at mean pressure $P_m = 50$ mbar.

3.2.2 Non-isothermal regime

For the track-etched membranes, the relaxation time τ_R is lower or even much lower than the gas conduction time τ_{cd}. In this case the pressure relaxation in the tanks can no more be considered as isothermal in time. We consider that the gas in the high pressure (resp. low pressure) tank evolves homogeneously and may be solely described by the pressure $P_1(t)$ and

the temperature $T_1(t)$ (resp. $P_2(t)$ and $T_2(t)$). The tank walls remain at the temperature T_0 of the chamber since their thermal inertia is very large compared to the inertia of the gas enclosed in the setup. The heat transfer between the gas and the tank is characterized by the conductance Γ. For the big tanks Γ was estimated at about 2.1 W.K^{-1} (Ai *et al*. 2016). Lastly we suppose that the flow within the sample is quasi-steady and isothermal at the temperature $T_1(t)$.

The energy balance for the high pressure tank then reads:

$$\frac{P_1(t)V}{RT_1(t)}C_{pg}\frac{dT_1(t)}{dt} = \frac{dP_1(t)}{dt}V + \Gamma\big(T_0 - T_1(t)\big) \qquad (10)$$

where C_{pg} is the molar heat capacity at constant pressure of the gas. The energy balance for the low pressure tank reads:

$$\frac{P_2(t)V}{RT_2(t)}C_{pg}\frac{dT_2(t)}{dt} = \frac{dP_2(t)}{dt}V + J(t)C_{pg}\big(T_1(t) - T_2(t)\big) + \Gamma\big(T_0 - T_2(t)\big) \qquad (11)$$

The molar flow $J(t)$ can be expressed as a function of the variables associated with the high pressure tank,

$$J(t) = -\frac{V}{RT_1(t)}\frac{dP_1(t)}{dt} + \frac{P_1(t)V}{R}\frac{dT_1(t)/dt}{T_1^2(t)} \qquad (12)$$

and as a function of the variables associated with the low pressure tank,

$$J(t) = \frac{V}{RT_2(t)}\frac{dP_2(t)}{dt} - \frac{P_2(t)V}{R}\frac{dT_2(t)/dt}{T_2^2(t)} \qquad (13)$$

The set of equations 6 and 10-13 fully describes the evolution of the gas in the set-up. Thus for each experimental test, the apparent permeability K_{app} (associated with the mean pressure $P_m = \big(P_1(0) + P_2(0)\big)/2$) may be identified by an inverse procedure: the pressure relaxations are computed by solving the above system with the initial conditions of the test and a permeability guess-value. The computed pressure evolutions are then compared to the experimental profiles. The objective function is defined as the mean squared difference between the simulated and measured pressure evolutions.

Fig. 7 shows an example of experimental pressure relaxations and associated computed ones, for a 10 µm track-etched membrane at $P_m = 957$ mbar. The identified apparent permeability is equal to $K_{\mathrm{app}} = 1.1\ 10^{-13}$ m^2 for the reported test. The identification under non-isothermal assumption with vanishing conductance Γ leads to the same value. In contrast a significantly higher value, *i.e.* $K_{\mathrm{app}} = 1.5\ 10^{-13}$ m^2, was identified under the isothermal regime assumption. We deduce that for the 10 µm membrane at $P_m = 957$ mbar, the gas enclosed within the setup behaves as an adiabatic system. As a comparison the permeability values identified from an experiment performed on a 10 µm membrane at $P_m = 30$ mbar are: $K_{\mathrm{app}} = 4.2\ 10^{-13}$ m^2 under non-isothermal assumption (with $\Gamma = 2.1$ W.K^{-1}), $K_{\mathrm{app}} = 3.1\ 10^{-13}$ m^2 under adiabatic assumption (vanishing Γ) and $K_{\mathrm{app}} = 4.4\ 10^{-13}$ m^2 under isothermal assumption. The relaxation regime turns from adiabatic to isothermal as the mean pressure decreases.

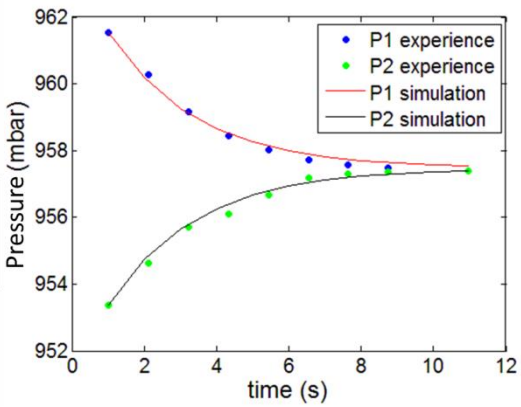

Fig. 7 Experimental pressure relaxations and computed ones (under non-isothermal assumption) minimizing the objective function. Experimental data were obtained with a 10 µm track-etched membrane at mean pressure $P_m = 957$ mbar. The identified apparent permeability is equal to $K_{\text{app}} = 1.1\ 10^{-13}$ m^2.

3.3 Klinkenberg plots

We performed a series of relaxation measurements at different mean pressures for the 80 nm and 10 µm trach-etched membranes, and also for Norway spruce in longitudinal and tangential direction (2 samples per direction). The experimental data obtained with the track-etched membranes were analyzed under the non-isothermal assumption whereas the data obtained with the Norway spruce samples were analyzed under the isothermal assumption. The permeability variations as a function of the reciprocal mean pressure are reported in Fig. 8.

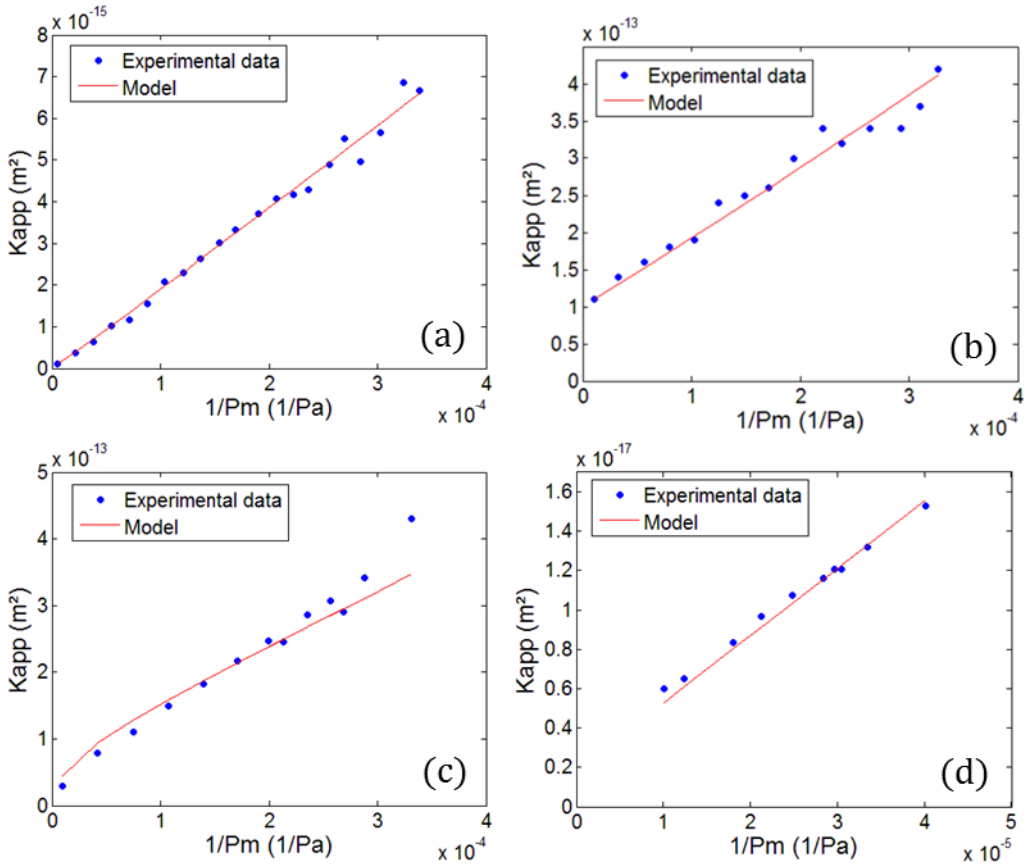

Fig. 8: Variations of the apparent permeability K_{app} as a function of the reciprocal mean pressure $1/P_m$. (a) 80 nm track-etched membrane, (b) 10 µm track-etched membrane, (c) Norway spruce in longitudinal direction (sample L1) and (d) Norway spruce in tangential direction (sample T1): experimental data (dots) and computed values (solid line).

We observe that the apparent permeability increases as the mean pressure decreases: this is due to the gas slippage in the pores which becomes significant for Knudsen number $\text{Kn} > 0.01$. Actually as the mean pressure decreases from 1000 mbar to 30 mbar, the Knudsen number increases from 2 to 60 (resp. from 10^{-2} to 0.5) in the pores of the 80 nm (resp. 10 µm) track-etched membrane. For Norway spruce in the same pressure range, the Knudsen number varies from 10^{-2} to 0.4 in the latewood tracheids and from 0.6 to 20 in the margo openings of the bordered pits. Since we could not characterize the size of the margo openings by ESEM, the Knudsen number of the flow in the openings relies on the opening diameter value identified in the next section.

For the 80 nm (resp. 10 µm) track-etched membranes, the permeability varies from $1.1\ 10^{-16}$ m^2 to $6.9\ 10^{-15}$ m^2 (resp. from $1.1\ 10^{-13}$ m^2 to $4.2\ 10^{-13}$ m^2) when the mean pressure decreases from 1930 mbar to 31 mbar (resp. from 957 mbar to 31 mbar). We note that for Norway spruce the permeability in the longitudinal (resp. tangential) direction increases from $2.9\ 10^{-14}$ m^2 at 999 mbar (resp. $6\ 10^{-18}$ m^2 at 993 mbar) up to $4.3\ 10^{-13}$ m^2 at 30 mbar (resp. $1.5\ 10^{-17}$ m^2 at 249 mbar). We estimated the intrinsic permeability K_∞ by linear extrapolation of the data for vanishing reciprocal mean pressure. We obtained $K_\infty = 9.6\ 10^{-14}$ m^2 for the 10 µm track-etched membrane to be compared with $7.9\ 10^{-14}$ m^2 estimated from Poiseuille's law

in short capillaries (using the pore density and the mean pore radius determined from the ESEM micrographs). We could not estimate the intrinsic permeability for the 80 nm membrane due to the absence of experimental data in the slip (and viscous) regime. For Norway spruce in the longitudinal direction, we found $K_\infty = 2.3\ 10^{-14}$ m^2 for sample L1 (Fig. 8c) and $K_\infty = 2.65\ 10^{-14}$ m^2 for sample L2 (not shown), in very good agreement with the value reported by Tarmian and Perré (2009). In the tangential direction, we obtained $K_\infty = 2.9\ 10^{-18}$ m^2 for sample T1 (Fig. 8d) and $K_\infty = 2.7\ 10^{-18}$ m^2 for sample T2 (not shown). We note that the longitudinal to tangential permeability ratio in Norway spruce is huge, *i.e.* about 10^4, in accordance with the values reported by Comstock for spruce species (1970). This is a consequence of the strongly anisotropic organization of the wood tissue.

4. Identification of pore-network parameters

Pore-network models are network representations of the structure of porous media. They are mesoscopic models. In term of scale, this class of models falls between the microscopic approach where the microgeometry of the porous medium is fully described and the macroscopic approach where the porous medium is described as an equivalent continuous medium with effective properties. In the present case pore-networks typically consist in elementary building blocks such as pipes or orifices connected in series or in parallel. For a given porous medium, we first need to define a suitable network and select a set of appropriate building blocks. Usually the definition of the network and the selection of the blocks rely on side information provided for instance by literature (wood anatomy) or by the manufacturer (membranes nominal specifications). We define the conductance of a building block as the ratio of the volume flow rate flowing through the block to the pressure difference between the inlet and the outlet of the block. The overall conductance of the pore-network is deduced using the analogy between fluid flows and electric circuit (non-linear effects associated with contiguous margo's openings will be neglected for example). In the present study we identify the network free-parameters (such as the pore connectivity) and the building blocks characteristics (such as the duct radius or the orifice radius) by minimizing the deviation between the experimental variations of the apparent permeability and the simulated ones.

4.1 Track-etched polycarbonate membranes

We consider that the membranes porosity consists in parallel identical cylindrical pores crossing perpendicularly the polycarbonate sheet. Furthermore, we assume that the gas flow in the pore is isothermal and we model it by Beskok and Karniadakis' pipe model (1999) since it is valid over a wide range of Knudsen number. We then obtain the following expression for the membrane apparent pemeability:

$$K_{\mathrm{app}} = \frac{N\pi r^4}{8}(1 + \alpha\ \mathrm{Kn})\left[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{\mathrm{Kn}}{1 - b\ \mathrm{Kn}}\right] \qquad (14)$$

The mean free path entering the Knudsen number $\mathrm{Kn} = \lambda/r$ is calculated according to Eq. 2 with the pressure set at P_m. α is a parameter of the Beskok and Karniadakis model and depends on Kn. σ is the accommodation coefficient. According to Ewart *et al*. (2007) and Agrawal and Prabhu (2008), σ lies typically between $\sigma = 0.7$ and $\sigma = 1$ (total accommodation) for flow

through microchannels. b is the so-called general slip coefficient. Beskok and Karniadakis determined that $b = -1$ for pipe flows under total accommodation assumption.

The pore-network unknowns are the pore density N and the mean pore radius r. We identified N and r by minimizing the mean squared difference between the permeability computed with Eq. 14 and the experimental data (see Fig. 8). Unless otherwise stated, identification was performed under full accommodation assumption ($\sigma = 1$). For the 80 nm membrane we found $N = 1.4\ 10^8$ pores/cm^2 and $r = 95$ nm. We note that the discrepancy between the identified values and the measured ones using ESEM is rather large (more than 100% for the pore radius) but the order of magnitude is correct. We also identified r with N fixed to the ESEM measured value and we obtained $r = 58$ nm in better agreement with the ESEM measurements. For the 10 µm membrane, we found $N = 9.9\ 10^4$ pores/cm^2 and $r = 4.1$ µm which concord well with the ESEM measurements. We note that the effect of the accommodation coefficient is significant since for $\alpha = 0.7$, we found $N = 2\ 10^4$ pores/cm^2 and $r = 6$ µm.

We point out that for the 80 nm membrane, the gas flow in the pores is in transition regime over the entire pressure range (30 to 2000 mbar). In the same pressure range, for the 10 µm membrane, the gas flow turns from transition regime to slip regime. It shows that the parameter identification is more reliable if the flow regime changes in the pressure range.

However, even in that case, we shall not forget the uncertainties related to (i) the simplifying assumptions in the non-isothermal model used to analyze the pressure relaxation kinetics in the tanks, (ii) the estimation of the conductance Γ entering this model, (iii) the isothermal assumption for the gas flow in the pores, (iv) the pore aspect ratio L/r which is not large enough for Beskok and Karniadakis' pipe model to be strictly applied (for the 10 µm membrane) and (v) the total accommodation assumption.

4.2 Norway spruce

We first need a model of softwood structure suitable for gas permeability. We used Comstock's model (1970) based on the following simplifying assumption: (i) tracheids are long rectangular boxes with imperforate ends, (ii) the bordered pits are uniformly distributed on the radial walls of the tracheids and (iii) tracheids overlap adjacent tracheids over half of their length. A scheme of this structure is presented in Fig. 9. We remind that pits are mainly aspired in earlywood. As a consequence earlywood is much less permeable than latewood. In the present model we thus considered that earlywood is perfectly impermeable. We define ϕ the latewood volume fraction of the sample. h is the tracheid longitudinal dimension. w and l are the radial and tangential dimensions (including the cell wall thicknesses) of the tracheids in latewood..

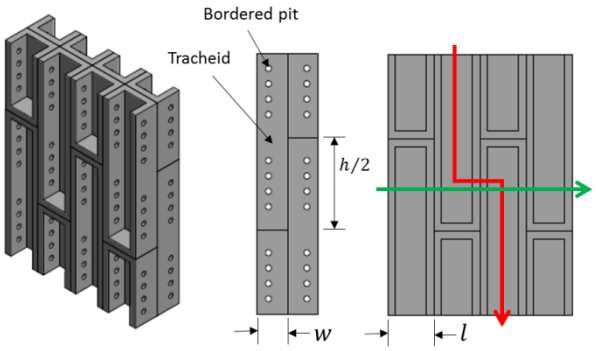

Fig. 9 Comstock's model (1970) of softwood structure: the red arrows indicate the gas flow path for permeability test in longitudinal direction and the green arrow indicates the flow path for permeability test in tangential direction.

In the present study the bordered pits are taken into account via the margo openings since the latter mainly control softwood gas permeability. We propose to model the gas flow in the tracheids by Beskok and Karniadakis pipe model and the gas flow in the pit openings by Borisov *et al.* (1973) orifice model.

The conductance κ_1 of half a tracheid is given by:

$$\kappa_1 = \frac{\pi r_1^4}{4\mu h}(1 + \alpha\,\mathrm{Kn}_1)\left[1 + 4\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{\mathrm{Kn}_1}{1 - b\,\mathrm{Kn}_1}\right] \qquad (15)$$

with r_1 the tracheid lumen equivalent radius, $\mathrm{Kn}_1 = \lambda/r_1$ the Knudsen number associated with the gas flow in the tracheids and λ calculated at P_m.

Besides, the conductance of an opening reads:

$$\kappa_2 = \frac{5\pi r_2^3}{16\mu}\mathrm{Kn}_2\,\xi_P^{or} \qquad (16)$$

where r_2 is the radius of the openings within the margo, $\mathrm{Kn}_2 = \lambda/r_2 = (r_2/r_1)\mathrm{Kn}_1$ is the Knudsen number associated with the gas flow through an opening, λ is calculated at P_m and ξ_P^{or} is a coefficient which depends on Kn_2 (Sharipov and Seleznev, 1998).

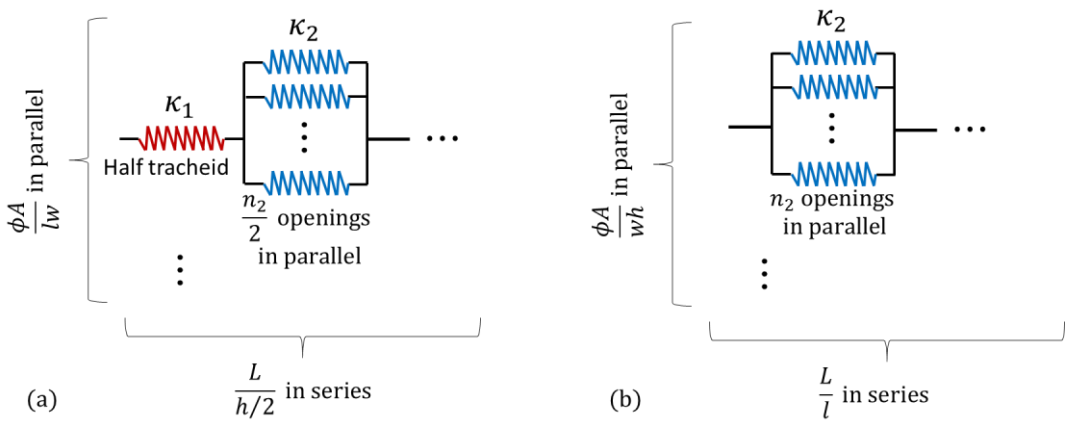

Fig. 10 Conductance network representing gas permeation in the longitudinal (a) and tangential (b) directions of Norway spruce.

Gas permeation in the longitudinal direction of Comstock's structure may be represented by the conductance network of Fig. 10(a). Thus the gas volume flow rate through the sample reads for a permeation test in longitudinal direction:

$$Q_{\text{long}} = \left[\left(\kappa_1^{-1} + \left(\frac{n_2}{2}\kappa_2\right)^{-1}\right)\frac{L}{h/2}\right]^{-1}\frac{A\phi}{wl}\Delta P \qquad (17)$$

where n_2 is the number of pit openings per tracheid. According to Fig. 10(b) the gas volume flow rate in tangential direction is given by:

$$Q_{\text{tang}} = n_2\kappa_2\,\frac{l}{L}\,\frac{A\phi}{wh}\,\Delta P \qquad (18)$$

From Eq. 15-18 the limit of the longitudinal to tangential permeability ratio for vanishing Knudsen number reads:

$$\lim_{\text{Kn}_1 \to 0}\frac{K_{\text{long}}}{K_{\text{tang}}} \cong \frac{h^2}{4w^2} \qquad (19)$$

Since the tracheid length h varies between 2.8 mm and 4.29 mm for mature Norway spruce (Brändström 2001), h may be fixed to about 3.5 mm. Besides, ESEM measurements showed that $w = 17$ µm in latewood. We then obtain $h^2/(4w^2) \cong 1.1\ 10^4$ in reasonable agreement with the ratio of intrinsic permeabilities that we measured earlier, in the order of $8\ 10^3$ to 10^4.

For the identification, we considered three unknowns, *i.e.* the volume fraction ϕ of latewood, the number n_2 of pit openings per tracheid in latewood and the opening's effective radius r_2. The tracheid length h was still fixed to 3.5 mm. w, l and r_1 were set at the values that we measured by ESEM in latewood. Identification was performed simultaneously in longitudinal and tangential directions under full accommodation assumption. It should be noted that since we are dealing with wood samples cut in the same plank of a "resonance spruce", we may assume that the spruce samples have the same latewood fraction ϕ. The identification on samples L1 and T1 (resp. L2 and T2) leads to $\phi = 0.26$, $r_2 = 0.12$ µm and $n_2 = 90$ (resp. to $\phi = 0.30$, $r_2 = 0.10$ µm and $n_2 = 56$).

The low value of r_2 confirms that the softwood permeability (in longitudinal and tangential directions) is controlled by the margo openings rather than by the pit apertures. Although Norway spruce is well documented (Lindström 1997, Brändstrom 2001, Trtik *et al*. 2007), we could not find in literature a thorough study on Norway Spruce's bordered pits. However, we found a study focusing on Douglas-fir (Domec *et al*. 2006). According to pit's micrographs (exhibiting the torus and the margo), Norway spruce's pits (Barlow and Woodhouse 1990) look very similar to Douglas-fir ones (Domec *et al*. 2006). Domec *et al*. measured the bordered pits characteristics from scanning electron micrographs and report mean opening radius between 0.22 µm and 0.31 µm in the trunk latewood. The opening radius values that we presently identified are thus in reasonable agreement with Domec *et al*. results. Furthermore, it is in good agreement with the value (about 0.15 µm) identified by Petty on Sitka spruce in longitudinal direction. Two reasons may be advanced to explain that the opening mean radius is underestimated, *i.e*. (i) the orifice model is characterized by a vanishing thickness whereas the strands forming the margo are about 100 nm thick (ii) the networks of Fig. 10 neglect some minor resistances such as the resistance associated with the pit apertures.

The identified latewood fraction is greater than the value estimated by binocular loupe, *i.e*. about 0.16. According to Tjoelker *et al*. (2007), the pit number per tracheid varies between 70 and 210 for Norway spruce. The lower bound typically corresponds to the pit number per tracheid in latewood. Bao *et al*. (2001) reports the proportion of aspired pits in Chinese yezo spruce after air-drying: it is equal to 86.3% (resp. 97.5%) in latewood (resp. earlywood) of heartwood. Assuming that the same proportions hold in Norway spruce, we obtain about 10 conductive pits per tracheid in latewood. Since we found $n_2 = 56$ and $n_2 = 90$ depending on the dataset, about 5 to 9 openings (of effective radius r_2) per bordered pit are expected. This value is about 6 to 10 times lower than the mean number of openings within the margo as measured by Domec *et al*. in Douglas-fir's trunk latewood. This discrepancy is attributed to the fact that it is difficult to separate the effect of ϕ from the effect of n_2 on the permeabilities since (i) both ϕ and n_2 enter Eq. 18 in the form of the product ϕn_2 and (ii) the dependence of Eq. 17 on ϕ and n_2 degenerates in a dependence on the solely product ϕn_2 in the limit of vanishing Knudsen number.

5. Conclusion

In the present work, we revisited a method developed by Petty in the late sixties to determine morphological parameters of dry wood from gas permeability measurements. We proposed a new apparatus able to measure gas apparent permeability of porous media over a wide range of permeability values (from 10^{-10} to 10^{-18} m^2) and a large range of gas mean pressure (from 2 bar down to 35 mbar). In our approach, the transient character of the experiments is rigorously taken into account in the data analysis and the apparent permeability is determined from the pressure relaxation kinetics on either side of the tested samples. We theoretically examined the thermal behavior of the gas enclosed in the setup and proposed two models to determine the permeability depending on the thermal regime, *i.e*. isothermal or non-isothermal. Morphological parameters are then identified from the variations of apparent permeability as a function of the mean pressure using a pore network model.

This approach was first applied to track-etched membranes characterized by well-defined cylindrical pores. Apparent permeabilities were determined under non-isothermal assumption. When flow regime changes occurred in the investigated pressure range, we could identify the pore density and the mean pore radius of the membrane, in good agreement with the ESEM measurements.

Lastly, Norway spruce specimens were investigated. Apparent permeabilities were determined under isothermal assumption. We identified the mean radius of the pores, *i.e.* openings within the margo of the bordered pits, controlling wood permeability in the longitudinal and tangential directions, in good agreement with the data reported in literature. We also identified the mean volume fraction of latewood (*i.e.* the permeable fraction of air-dried wood) and the mean number of openings per tracheid. The latewood volume fraction is overestimated compared to the value estimated by binocular loupe whereas the mean number of openings per tracheid is underestimated compared to anatomical data (Domec *et al*. 2006). It is actually difficult to separate the effects of these parameters since the permeabilities mainly depend on their product.

References

Adzumi H (1937) On the flow of gases through a porous wall. Bull Chem Soc Japan 12:304-312

Agoua E, Perré P (2010) Mass transfer in wood: Identification of structural parameters from diffusivity and permeability measurements. Journal of porous media, 13:1017-1024

Agrawal A, Prabhu SV (2008) Survey on measurement of tangential momentum accommodation coefficient. J Vac Sci Technol A 26:634-645

Ai W, Duval H, Pierre F, Perré P (2016) A novel device to measure gaseous permeability over a wide range of pressure: characterization of slip flow for various wood species and wood-based materials. Holzforschung accepted for publication.

Almeida G, Leclerc S, Perre P (2008) NMR imaging of fluid pathways during drainage of softwood in a pressure membrane chamber, International Journal of Multiphase Flow 34:312-321

Bao FC, Lu J, Zhao Y (2001) Effect of bordered pit torus position on permeability in Chinese yezo spruce. Wood Fiber Science 33:193-199

Barlow CY, Woodhouse J (1990) Bordered pits in spruce from old Italian violins. Journal of Microscopy 160:203-211

Beskok A, Karniadakis GE (1999) A model for flows in channels, pipes, and ducts at micro and nano scales, Microscale Thermophys Eng. 3: 43–77

Borisov SF, Neadachin IG, Porodnov BT, Suetin PE (1973) Stream of rarefied gases through an opening at small pressure drops. Zhurnal Tekhnicheskoi Fiziki 43:1735-1739

Brändström J (2001) Micro- and ultrastructural aspects of Norway spruce tracheids: a review. IAWA Journal 22:333-353

Brenner H (2005) Kinematics of volume transport. Phys A 349:11-59

Civan F (2010) Effective correlation of apparent gas permeability in tight porous media. Transp Porous Med 82:375-384

Comstock GL (1970) Directional permeability of softwoods. Wood Fiber Sci 1:283-289

Dixon MA, Joly J (1894) On the ascent of sap. Philosophical Transactions of the Royal Society London, Series B 186: 563-576

Domec JC, Lachenbruch B, Meinzer FC (2006) Bordered pit structure and function determine spatial patterns of air-seeding thresholds in xylem of Douglas-fir (Pseudotsuga menziesii; Pinaceae) trees. American Journal of Botany 93: 1588-1600

Ewart T, Perrier P, Graur I, Méolans G (2007) Tangential momentum accommodation in microtube. Microfluid Nanofluid 3:689-695

Florence FA, Rushing JA, Newsham KE, Blasingame TA (2007) Improved permeability prediction relations for low permeability sands. Paper SPE 107954 presented at tha 2007 SPE Rocky Mountain Oil and Gas Technology Symposium, Denver, Colrado, USA, 16-18 April 2007

Hirschfelder JO, Curtiss CF, Bird RB (1954) Molecular theory of gases and liquids, John Wiley and Sons Inc., New York

Klinkenberg LJ (1941) The permeability of porous media to liquids and gases. In: Drilling and Production Practice, The American Petroleum Institute, New York, pp 200-213

Lindström H (1997) Fiber length, tracheid diameter, and latewood percentage in Norway spruce: development from pith outwards. Wood and Fiber Science 29:21-34

Lu J, Avramidis S (1999) Non-Darcian air flow in wood. Part 3. Molecular slip flow. Holzforschung 53:85-92

Lv Q, Wang E, Liu X, Wang S (2014) Determining the intrinsic permeability of tight porous media based on bivelocity hydrdynetics. Microfluid Nanofluid 16:841-848

Petty JA (1970) Permeability and structure of the wood of Sitka spruce. Proc Roy Soc Lond B 175: 149-166

Petty JA, Preston RD (1969) The dimensions and number of pit membrane pores in conifer wood. Proc Roy Soc Lond B 172:137-151

Phillips EWJ (1933) Movement of the pit membrane in coniferous woods, with special reference to preservative treatment. Forestry 7:109-120

Rasband WS, ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, http://imagej.nih.gov/ij/, 1997-2014.

Scholander PF, Hammel HT, Bradstreet EA, Hemmingsen EA (1965) Sap pressure in vascular plants. Science 148:339-346

Sebastian LP, Côté WA, Skaar C (1965) Relationship of gas phase permeability to ultrastructure of white spruce wood. Forest Product J 15:394-404

Sharipov F, Seleznev V (1998) Data on internal rarefied gas flows. J Phys Chem Ref Data 27:657-706

Siau JF (1995) Wood: Influence of moisture on physical properties, Department of Wood Science and Forest Products, Virginia Polytechnic Institute and State University, Keene

Tarmian A, Perré P (2009) Air permeability in longitudinal and radial direction of reaction wood as compared to normal wood: compression wood of Picea abies and tension wood of Fagus sylvatica. Holzforchung 63:352–356

Tjoelker MG, Boratynski A, Bugala W (2007) Biology and Ecology of Norway Spruce, Springer, Dordrecht

Trtik P, Dual J, Keunecke D, Mannes D, Niemz P, Stähli P, Kaestner A, Groso A, Stampanoni M (2007) 3D imagning of microstructure of spruce wood. Journal of Structural Biology 159:46-55

V. Conclusion et perspectives

Les méthodes directes pour investiguer la porosité multi échelle d'un matériau poreux, par exemple l'analyse de coupes sériées ou la micro-tomographie, ne permettent pas en général d'avoir un accès suffisamment précis aux plus petits pores nécessaire au cheminement de fluides. Dans de nombreux matériaux, ces plus petits orifices ont en effet souvent une taille inférieure au micromètre. Même les dernières évolutions de la tomographie vers des résolutions sub-micrométriques ne savent pas distinguer un orifice actif d'un orifice sur une porosité fermée.

L'examen de la bibliographie montre que l'analyse de variations de perméabilité apparente du gaz en fonction de l'inverse de pression moyenne permet d'investiguer la morphologie des milieux poreux. Cette méthode, qui a notamment été appliquée au matériau bois, nécessite au préalable une connaissance de l'inter-connectivité des éléments anatomiques, qui permet de représenter le bois comme un réseau poral constitué par des éléments disposés en série/parallèle : trachéides connectées par des ponctuations aréolées chez les résineux ou vaisseaux connectés par des perforations chez les feuillu.

Dans ce travail de thèse, nous avons développé une nouvelle approche de mesure de multi-porosité du bois partant de la méthode de Petty. Pour ce faire, nous avons conçu un dispositif original qui permet de mesurer une large gamme de perméabilité gazeuse de 10^{-10} à 10^{-18} m² pour échantillons du bois et des échantillons à base du bois à des niveaux de pression variant de 30 à 1000 mbar. L'originalité de notre dispositif est qu'il n'utilise pas de débitmètre : le flux est simplement déterminé par la relaxation de la différence de pression entre les deux chambres de volume connu.

Les résultats de comparaison des simulations numériques du comportement du gaz dans le dispositif en régimes isotherme, adiabatique et réel nous ont montré qu'il est fiable de caractériser la perméabilité apparente du bois en régime isotherme d'après nos mesures. Les erreurs de calcul de perméabilité lorsque le régime n'est plus en isotherme sont quantifiées. Par exemple pour la perméabilité de 10^{-11} m² à 1000 mbar l'erreur relative engendrée par le calcul en isotherme par rapport au régime réel est égale à 27%. En régime adiabatique, cette erreur se réduit à 3%. En fait, pour les échantillons très perméables, le temps de relaxation du gaz dans les réservoirs est très court devant le temps du régime thermique transitoire : le régime passe progressivement d'un régime adiabatique vers un régime isotherme. Une formulation théorique a été proposée et résolue par modélisation numérique pour simuler de régime réel. Cela nous permet de proposer un protocole rigoureux pour déterminer la perméabilité apparente à partir de l'évolution des pressions au cours du temps :

- Pour les échantillons de faible perméabilité, typiquement inférieure à 10^{-13} m², le comportement du gaz dans le dispositif est en régime isotherme et le calcul de la perméabilité apparente utilise une formule simple basée sur la décroissance exponentielle de la différence de pression.
- Pour les échantillons de grande perméabilité, la valeur de perméabilité apparente est déterminée par méthode inverse, en utilisant la simulation numérique du dispositif expérimental.

Nous avons défini les conditions expérimentales qui nous permettent d'effecteur les mesures de perméabilité en fonction de directions de l'échantillon du bois dans le tronc d'arbre. Pour les échantillons de bois dans la direction longitudinale la perméabilité est souvent grande, afin de ralentir le temps d'acquisition des données et minimiser les erreurs de calcul de perméabilité engendrées en régime isotherme nous avons utilisé deux réservoirs de 24 litres avec un support d'échantillon pour recevoir l'échantillon du bois de petit diamètre (18 mm). Pour les échantillons de bois dans les directions tangentielle et radiale, la perméabilité est très faible, des réservoirs de 0,2

litre sont utilisés avec un plus grand support d'échantillon pour recevoir l'échantillon de 72 mm de diamètre. Pour les autres matériaux, le même principe est appliqué : choix du volume de gaz et de la géométrie d'échantillon en fonction de la valeur de perméabilité.

Tous les échantillons ont été mesurés selon une séquence de pression moyenne sur une gamme allant de 1 bar à quelques dizaines de mbar : chaque point dans la courbe de perméabilité apparente en fonction de la pression correspond donc à une mesure.

Différents modèles ont été utilisés pour identifier les paramètres structuraux du bois. Tous ces modèles requièrent au préalable un schéma inspiré de la morphologie du bois. Ce schéma, similaire au réseau électrique est constitué par les éléments fondamentaux correspond à l'anatomie du bois. Chaque élément fondamental est décrit par un modèle approprié pour l'écoulement des fluides. Par exemple pour le bois d'été d'épicéa, les trachéides possèdent un diamètre interne d'environ 20 µm et une longueur en moyenne de 3500 µm. L'écoulement de fluide dans la trachéide peut être simulée par le modèle de cylindre. Pour la ponctuation dans l'épicéa, elle contient un torus au milieu de la chambre de ponctuation. Entre le torus et la paroi de la chambre de ponctuation il existe une marge annulaire composée de fibrilles. L'écoulement du fluide dans la marge annulaire de ponctuation peut être représenté soit par des orifices, soit par des fentes. Le principe de l'identification consiste à utiliser les propriétés de changement de régime pour chaque élément fondamental lorsque la pression change afin d'ajuster les inconnues (le diamètre et le nombre de pores) pour que le modèle théorique corresponde aux mesures.

Parmi les résultats remarquables de ce travail, nous avons mis en évidence les mêmes tailles de pores dans le cas de l'épicéa, à la fis en direction tangentielle et en direction longitudinale. Cela signifie que dans les deux directions, la résistance à l'écoulement correspond au passage dans le margo des ponctuations aréolées. Dans le cas du hêtre, les mêmes tailles de rayon sont identifiées en directions longitudinale et tangentielle : les ponctuations intervasculaires. Cela n'est pas vrai en direction radiale, avec une taille de pore plus petite, soit les ponctuations dans rayons, soit les espaces intercellulaires de ces cellules de parenchyme.

En bref, ce travail de recherche a permis de mettre en place une nouvelle approche permettant d'accéder à des informations qui nous renseignent sur la connectivité et les tailles de pores dans le bois. Ces travaux peuvent avoir une application dans le domaine de séchage du bois et les milieux poreux peu perméables.

Il est vrai que les modèles de bois utilisés dans cette thèse contiennent des simples éléments fondamentaux par exemple le cylindre, l'orifice ou la fente pour assimiler à des pores dans le bois. Tous ces modèles traduisent de façon simple les comportements du gaz dans un milieu poreux qui possède pourtant des pores plus complexes. Ce qui nous permet d'entrevoir quelques perspectives pour un approfondissement sur le transfert masse/chaleur dans le bois pour la suite des recherches :

- Un approfondissement peut envisager une modélisation (résolution de l'équation de Boltzmann à l'aide d'une méthode FPM pour Finite Pointset Method) du gaz raréfié dans une ponctuation afin de mieux comprendre le phénomène d'aspiration de la ponctuation pour les résineux.
- Une simulation numérique peut être envisagée à un modèle plus fin en 2 dimensions axisymétriques finalement en 3 dimensions qui prend en compte la complexité des interconnections des pores qui reflète plus réellement le comportement de la perméation du gaz dans le bois.
- Projet plus simple à mettre en place : le dispositif développé dans ce travail pourrait servir à caractériser une large variété de milieux poreux, par exemple un échantillon représentatif des matériaux de construction.

VI. Annexe

Identification des paramètres structuraux de l'épicéa

Nous avons identifié les paramètres structuraux pour un échantillon d'épicéa dans la direction longitudinale à partir de l'approche de Petty qui tient compte de la résistance hydraulique de trachéide. L'écoulement dans les ponctuations est décrit respectivement par les modèles de cylindre, fente et orifice. Les résultats obtenus sont résumés dans les tableaux ci-après.

Nous avons présenté les mesures expérimentales pour la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne dans les figures 24, 25 et 26. Sur ces figures, la courbe montre le meilleur ajustement, au sens des moindres carrées, obtenu par le modèle correspondant.

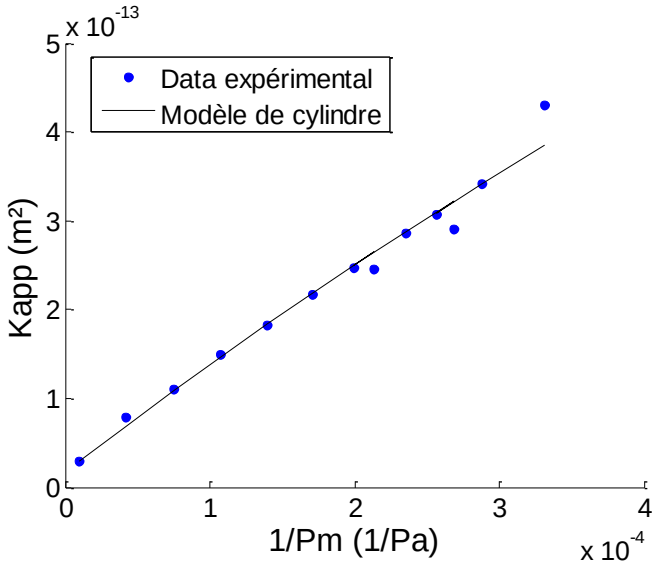

Figure 1. Variations de la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne dans le cas de l'épicéa dans la direction longitudinale : données expérimentales (o) et simulation à l'aide de modèle de cylindre après ajustement des paramètres (trait continu).

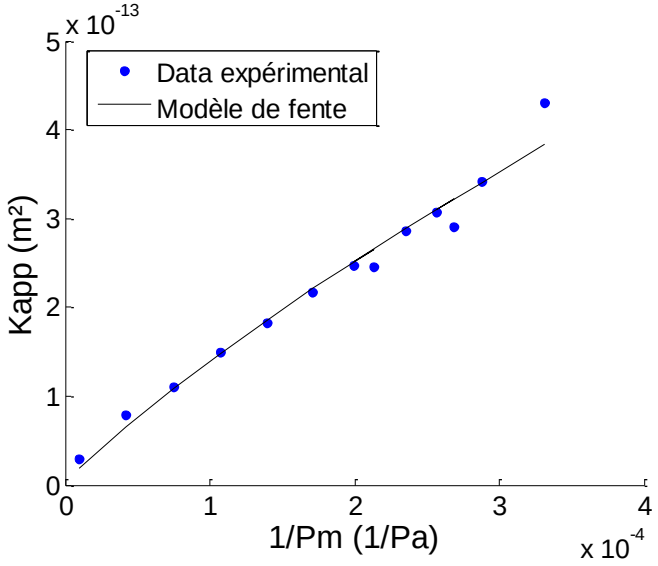

Figure 2. Variations de la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne dans le cas de l'épicéa dans la direction longitudinale : données expérimentales (o) et simulation à l'aide de modèle de fente après ajustement des paramètres (trait continu).

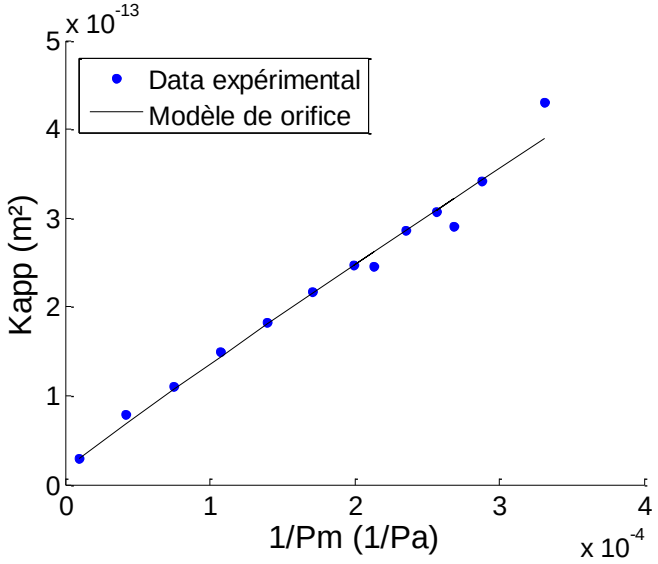

Figure 3. Variations de la perméabilité apparente en fonction de l'inverse de la pression moyenne dans le cas de l'épicéa dans la direction longitudinale : données expérimentales (o) et simulation à l'aide de modèle de l'orifice après ajustement des paramètres (trait continu).

Les résultats identifiés par ces trois modèles sont résumés dans les tableaux 2 à 4.

Tableau 1. Paramètres structuraux identifiés avec le modèle de cylindre sur l'épicéa dans la direction longitudinale

Modèle de cylindre	Epicéa (*Picea abies*)
Porosité active (ε)	0,02
Rayon équivalent de trachéide (a_1)	39,3 µm
Rayon équivalent de cylindre dans la marge annulaire de ponctuation (a_2)	0,73 µm
Ratio de rapport de longueur de cylindres (α) par rapport au nombre de cylindres (n_2) par trachéide ($\frac{\alpha}{n_2}$)	$2\ 10^{-5}$

Tableau 2. Paramètres structuraux identifiés avec le modèle de fente sur l'épicéa dans la direction longitudinale

Modèle de fente	Epicéa (*Picea abies*)
Porosité active (ε)	0,02
Rayon équivalent de trachéide (a_1)	39,8 µm
Largeur de la marge annulaire dans la ponctuation (a_2)	0,26 µm
Périphérie accumulée de la marge annulaire dans la ponctuation ($n_2 p$)	18 µm

Tableau 3. Paramètres structuraux identifiés avec le modèle de l'orifice sur l'épicéa dans la direction longitudinale

Modèle de l'orifice	Epicéa (*Picea abies*)
Porosité active (ε)	0,02
Rayon équivalent de trachéide (a_1)	39,8 µm
Rayon de pore dans la marge annulaire de ponctuation (a_2)	0,33 µm
Nombre de pores dans la marge annulaire de ponctuation (n_2)	14

Ces trois modèles nous donnent un rayon équivalent de trachéide égale à 39 µm, plutôt élevé mais qui reste dans le même ordre de grandeur de rayon mesuré par microscopie électronique à balayage (MEB, FEI Quanta 200), soit 11,7 µm. Par contre, le rayon du pore dans la marge annulaire de ponctuation identifié par le modèle de cylindre est un peu plus grand (0,73 µm) que celle identifié par le modèle de l'orifice (0,33 µm). Ce paraît logique car orifice est considéré comme un cylindre avec une longueur infiniment petit donc le rayon identifié est relativement plus petit que celui identifié par le modèle de cylindre. Domec et al. 2006 a mesuré des rayons moyens de pore dans la marge annulaire de ponctuation du bois d'été de sapin de Douglas (*Pseudotsuga menziesii*) par MEB dans l'intervalle allant de 0,23 à 0,34 µm. Les rayons identifiés par ces deux modèles sont en bon accord. Pour le modèle de fente, une largeur de fente de 0,26 µm a été identifiée, ce qui est en bon accord avec Domec et al. (2006). En plus, ce modèle a identifié la périphérie accumulée de la marge annulaire qui entoure le torus, elle est égale à 18 µm. Domec et al. 2006 a mesuré le diamètre du sapin de Douglas, il est dans l'intervalle allant de 6,4 à 8,5 µm correspond à une périphérie allant de 20,1 à 26,7 µm. Donc par le modèle de fente, on a pu identifier une fente par ponctuation. Il faut noter qu'il a une partie de circonférence dans la ponctuation qui sert à l'écoulement du gaz car il existe des fibrilles qui obstruent les ouvertures.

Sur les identifications de nombre de pores dans la marge annulaire de ponctuation par trachéide, le modèle de l'orifice prédit 14 pores. Ce nombre prédit est plus petit que celle identifié par Petty 1969 sur le bois de l'épinette de Sitka (*Picea sitchensis*) qui a évalué 250 pores de conduction par trachéide qui suggère qu'il a entre 50 et 100 pores de conduction dans chaque ponctuation, donc il a identifié 2 à 5 ponctuations par trachéide. Néanmoins il a identifié une taille de pore plus petit, soit 0,14 µm. Le modèle de cylindre a identifié le ratio $\frac{\alpha}{n_2}$ de rapport de longueur de cylindres par rapport au nombre de cylindres par trachéide, soit 2 10^{-5}. D'après Domec et al. (2006), l'épaisseur de fibrille dans la marge annulaire de ponctuation varie entre 0,123 à 0,153 µm. La longueur moyenne d'une trachéide est de 3500 µm. Le ratio α de longueur de petit cylindre par rapport à la longueur de trachéide est donc entre 3,5 10^{-5} à 4,4 10^{-5}. On divise le ratio $\frac{\alpha}{n_2}$ par la valeur moyenne de α, soit 4 10^{-5}. Et on trouve le nombre de pores n_2 dans la marge annulaire de ponctuation par trachéide est égale à 2. Il est plus petit que 14 orifices prédits par le modèle de l'orifice mais il prédit un rayon plus grand qui est égale à 0,73 µm.

Pour la porosité active de l'épicéa, nous l'avons identifié à 0,02. La porosité active ici est définie comme le ratio de volume des trachéides actives par rapport au volume total de l'échantillon du bois. Petty 1969 a identifié sur l'épinette de Sitka (*Picea sitchensis*) dans la direction longitudinale un rayon moyen de trachéide de 9,85 µm avec le nombre moyen de trachéide de 11370 trachéides sur

l'échantillon de diamètre de 14 mm. La porosité active est donc d'après la relation ($\varepsilon = \frac{N_1 \pi a_1^2}{S_{bois}}$ avec N_1 : nombre de trachéides dans l'échantillon bu bois, S_{bois} : surface de l'échantillon du bois) égale à 0,0225. Nos résultats sont très proches de celles obtenus par Petty.

VII. Références

Albertoni, S., Cercignani, C., Gotusso, L. (1963) Numerical evaluation of the slip coefficient. Physics of Fluids, 6:993-996.

Arkilic, E.B., Breuer, K.S., Schmidt, M.A. (2001) Mass flow and tangential momentum accommodation in silicon micromachined channels. Journal of Fluid Mechanic, 437:29-43.

Arkilic, E.B., Schmidt, M.A., Breuer, K.S. (1997) Gaseous slip flow in long microchannels. Journal of Microelectromechanical Systems, 6(2):167-178.

Beskok, A., Karniadakis, G.E. (1996) Rarefaction and compressibility effects in gas microflows. Journal of Fluids Engineering, 118(3):448-456.

Beskok, A., Karniadakis, G.E. (1999) A model for flows in channels, pipes, and ducts at micro and nano scales. Microscale Thermophysical Engineering, 3(1):43-77.

Bird, G.A. (1994) Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows. Clarendon Press, 2nd Ed, Oxford, 484 p.

Bosshard, H.H. (1974) Holzkunde, Birkhäuser Verlag, t. 1, 224 p. et t. 2, 312 p.

Brunauer, S., Emmett, P.H., Teller, E. (1938) Adsorption of Gases in Multimolecular Layers. Journal of the American Chemical Society, 60 (2):309-319.

Cai, L., Oliveira, L. (2007) Gas Permeability of Wetwood and Normal Wood of Subalpine Fir in Relation to Drying. Drying Technol., 25:501-505.

Carman, P.C. (1956) Flow of Gases Through Porous Media. Butterworths, London, 182p.

Cercignani, C. (1964) Institute of Engineering Research Report AS- 64–19, University of California, Berkeley.

Chapman, S., Cowling, T.G. (1970) The mathematical theory of non-uniform gases, 3rd Ed, Cambridge University Press, NewYork, 448p.

Choong, E.T., Fogg, P.J. (1968) Moisture movement in six wood species. Forest Product Journal, 18(5):66-70.

Choong, E.T., Tesoro, F.O., Manwiller, F.G. (1974) Permeability of twenty-two small diameter hardwoods growing on southern pine sites. Wood and Fiber, 6(1):91-101.

Civan, F. (2010) Effective correlation of apparent gas permeability in tight porous media. Transport in Porous Media, 82:375-384.

Comstock, G.L. (1968) Physical and structural aspects of the longitudinal permeability of wood. Thèse de doctorat, State University of New-York.

Comstock, G.L. (1970) Directional permeability of softwood. Wood and Fiber, 1(4):283–289.

Coster, M., Chermant, J.L. (1989) Précis d'analyse d'images. Presses du CNRS 2nd Ed, Paris, 521p.

Coussy, O. (1991) Mécanique des milieux poreux. Editions Technip, Paris, 445p.

Darcy, H. (1856) Les fontaines Publiques de la Ville de Dijon. Dalmont, Paris.

Edward, Y.H.K. (1970) Air and helium pycnometer. Powder Technology, 3(3): 179-180.

Deissler, R.G. (1964) An analysis of second-order slip flow and temperature-jump boundary conditions for rarefied gases. International Journal of Heat and Mass Transfer, 7(6):681-694.

Domec, J.C., Lachenbruch, B., Meinzer, F. (2006) Bordered pit structure and function determine spatial patterns of air-seeding thresholds in xylem of douglas-fir (Pseudotsuga menziesii; Pinaceae) trees. American Journal of Botany, 93(11): 1588-1600.

Dongari, N., Agrawal, A., Agrawal, A. (2007) Analytical solution of gaseous slip flow in long microchannels. International Journal of Heat and Mass Transfer, 50(17-18):3411–3421.

Dullien, F.A.L. (1991) Porous media: fluid transport and pore structure. Academic Press, New-York, 575 p.

Gilani, M.S., Boone, M.N., Mader, K., Schwarz, F.W.M.R. (2014) Synchrotron X-ray micro-tomography imaging and analysis of wood degraded by Physisporinus vitreus and Xylaria longipes. Journal of Structural Biology, 187: 149-157.

Gibelli, L. (2012) Velocity slip coefficients based on the hard-sphere Boltzmann equation. Phys of Fluids, 24(2):022001.

Grosser, D. (1977) Die Hölzer Mitteleuropas. Springer Verlag, Berlin, 208 p.

Hadjiconstantinou, N.G. (2003) Comment on Cercignani's second-order slip coefficient. Physics of Fluids, 15(8), 2352.

Harley, J.C., Huang, Y., Bau, H.H., Zemel, J.N. (1995) Gas flow in micro- channels. Journal of Fluid Mechanics, 284:257–274.

Hass, P., Wittel, F.K., McDonald, S.A., Marone, F., Stampanoni, M., Herrmann, H.J., Niemz, P. (2010) Pore space analysis of beech wood: the vessel network. Holzforschung, 64:639-644.

Hsia, Y.T., Domoto, G.A. (1983) An experimental investigation of molecular rarefaction effects in gas lubricated bearings at ultralow clearances. Journal of Lubrification Technology, 105:120-130.

Howard, E.T., Manwiller, F.G. (1969) Anatomical characteristics of southern pine stemwood. Wood Science, 2:77-86.

Jacquiot, C., Trenard, Y., Dirol, D. (1973) Atlas d'anatomie des bois des angiospermes (essences feuillues). Centre technique du bois, Paris, 175 p.

Keller, R. (1991) Structure, composition, formation du bois. Ecole Nationale du Génie Rural, des Eaux et des Forêts (ENGREF). Nancy.

Klinkenberg, L.J. (1941) The permeability of porous media to liquids and gases. In Drilling and Production Practice. The American Petroleum Institute, New York, pp.200-213.

Kozeny, J. (1927) Royal Academy of Science, Vienna, Process Class 1, 136, 271.

Lautner, S., Beckmann, F. (2012) Analysis of wood microstructure by synchrotron radiation-based X-ray microtomography (SRμCT). In SPIE Optical Engineering Applications. International Society for Optics and Photonics, 8506:85060F.

Liu, J., Tai, Y.C., Ho, C.M. (1995) MEMS for pressure distribution studies of gaseous flows in microchannels. In Proceedings of the 8th IEEE annual international workshop on micro-electro-mechanical systems (MEMS'95), 209-215.

Labbé, N. (2002) Mise au point d'une nouvelle méthode de dosage de l'eau dans le bois et caractérisation des composés organiques du pin maritime par résonance magnétique nucléaire domine temps. Thèse de doctorat, Bordeaux 1.

Lockerby, D.A., Reese, J.M. (2008) On the modelling of isothermal gas flows at the microscale. Journal of Fluid Mechanics, 604:235-261.

Lorenzani, S. (2011) Higher order slip according to the linearized Boltzmann equation with general boundary conditions. Philosophical transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical, and Engineering Sciences, 369(1944):2228–36.

Loyalka, S., Hamoodi, S. (1990) Poiseuille flow of a rarefied gas in a cylindrical tube: Solution of linearized Boltzmann equation. Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, 2(11):2061-2065.

Loyalka, S.K., Hickey, K.A. (1989) Plane Poiseuille flow: near continuum results for a rigid sphere gas. Physica A: Statistical Mechanics and its Applications, 160(3):395-408.

Lu, J., Avramidis, S. (1997) Non-Darcian air flow in wood. Part 1. Specimen length effect. Holtzforschung, 51:577-583.

Lu, J., Avramidis, S. (1999) Non-Darcian air flow in wood. Part 3. Molecular slip flow. Holtzforschung, 53:85-92.

Maurer, J., Tabeling, P., Joseph, P., Willaime, H. (2003) Second-order slip laws in microchannels for helium and nitrogen. Physics of Fluids, 15:2613-2621.

Maxwell, J.C. (1879) On stresses in rarefied gases arising from inequalities of temperature. Philosophical Transactions of the Royal Society in London, 170:231–256.

Mayo, S., Evans, R., Chen, F., Lagerstrom, R. (2009) X-ray phase-contrast micro-tomography and image analysis of wood microstructure. In Journal of Physics: Conference Series, 186(1):012105.

Mitsuya, Y. (1993) Modified Reynolds equation for ultra-thin film gas lubrication using 1.5-order slip flow model and considering surface accommodation coefficient. Journal of Tribology, 115:289-294.

Nicholas, D.D., Siau, J.F. (1973) Factors influencing the treatability of wood. In Nicholas, D.D. (ed) Wood deterioration and its prevention by preservative treatments. II Preservatives and preservative systems. Syracuse University Press, Syracuse, 299-343.

Pan, L.S., Liu, G.R., Lam, K.Y. (1999) Determination of slip coefficient for rarefied gas flows using direct simulation Monte Carlo. Journal of Micromechanics and Microengineering, 9(1):89-96.

Perré, P. (1987) Le séchage convectif de bois résineux : choix, validation et utilisation d'un modèle, Thèse de doctorat, Université Paris-Diderot.

Perré, P., Karimi, A. (2002) Fluid migration in two species of beech (*Fagus sylvatica* and *Fagus orientalis*): apercolation model able to account for macroscopic measurements and anatomical observations. Maderas Ciencia tecnologia, 4(1):50-68.

Perré, P. (2007) Fluid migration in wood. In Fundamentals of wood drying, COST E15 et ARBOLOR, Nancy, 7:125-156.

Perré, P. (2015) Physique et mécanique du bois. In Savoir & Faire : le bois, Actes Sud, Paris, 52-70.

Petty, J.A. (1970) Permeability and structure of the wood of Sitka spruce. Proceedings of the Royal Society of London B: Biological Sciences, 175:149-166.

Petty, J.A., Preston, R.D. (1969) The dimensions and number of pit membrane pores in conifer wood. Proceedings of the Royal Society of London B : Biological Sciences, 172:137-151.

Piekos, E.S., Breuer, K. (1995) DSMC modeling of micromechanical devices. In 30th Thermophysics Conference.

Present, R.D. (1958) Kinetic Theory of Gases. McGraw-Hill Book Company, New York, 272p.

Redon, C., Chermant, L., Quenec'h, J.L., Chermant, J.L. (1997) Caractérisation par analyse d'images de la morphologie de bétons renforcés par des fibres de fonte amorphe. In Annales du bâtiment et des travaux public, 4 :37-53.

Rice, R., Onofrio, M. (1996) Longitudinal gaz permeability measurements from eastern white pine, red spruce, and balsam fir. Wood and Fiber Science, 28(3)301-308.

Rogério, M., Oliveira, G., Deiner, J., Calil, C. (2010) Permeability measurements of Brazilian Eucalyptus. Materials Research, 13(3):281-286.

Schamberg, R. (1947) The fundamental differential equations and the boundary conditions for high speed slip flow and their application to several specific problems. Thèse de doctorat, California Institute of Technology, Pasadena.

Sharipov, F., Seleznev, V. (1998) Data on Internal Rarefied Gas Flows. Journal of Physical and Chemical Reference Data, 27(3):657-706.

Shen, S., Chen, G., Crone, R.M., Dufresne, M.A. (2007) A kinetic-theory based first order slip boundary condition for gas flow. Physics of Fluids 19(8):086101.

Shih, J.C., Ho, C.M., Liu J., Tai, Y.C. (1996) Monatomic and poly-atomic gas flow through uniform microchannels. ASME DSC 59:197–203.

Siau, J.F., Petty, J.A. (1979) Corrections for capillaries used in permeability measurements in wood. Wood Science and Technology, 13:179-185.

Siau, J.F. (1984) Transport processes in wood. Springer Verlag, Berlin, 243 p.

Smith, D.N., Lee, E. (1958) The longitudinal permeability of some hardwoods and softwoods. HM Stationery Office, London, 13 p.

Smoluchowski von Smolan, M. (1898) Ueber Wärmeleitung in verdünnten Gasen. Annalen der Physik, 300: 101-130.

Sreekanth, A.K. (1969) Slip-flow through long circular tubes. In Proceedings of the 6th International Symposium on Rarefied Gas Dynamics, 1:667-680.

Stamm, A.J., Hansen, L.A. (1937) The bonding force of cellulosic materials for water (from specific volume and thermal data). Journal of Physical Chemistry, 41(7):1007-1016.

Stayton, C.L., Hart, C.A. (1965) Determining pore-size distribution in softwoods with a mercury porosimeter. Forest Product Journal, 15(10):435-440.

Struchtrup, H., Torrilhon, M. (2008) Higher-order effects in rarefied channel flows. Physical Review E 78:046301.

Sun, Y., Chan, W.K., Liu, N. (2002) A slip model with molecular dynamics. Journal of Micromechanics and Microengineering, 12(3):316-322.

Tanaka, T., Kawai, Y., Sadanari, M., Shida, S., Tsuchimoto, T. (2015) Air permeability of Sugi (*Cryptomeria Japonica*) wood in the three directions. Maderas. Ciencia y technologia, 17(1):17-28.

Taghiyari, H.R. (2013) Effects of heat-treatment on permeability of untreated and nanosilver-impregnated native hardwoods. Maderas. Ciencia y tecnologia, 15(2):183-194.

Wang, J., Dai, C., Liu, Y. (1991) Wood permeability. Journal of Northeast Forestry University, 2(1).

Ward, R.J., Côté, W.A., Day, A.C. (1964) The wood substrate-coating interface. Proc Paint Res Inst 30. Official Digest, 36:1091-1098.

Wu, L., Bogy, D.B. (2003) New first and second order slip models for the compressible Reynolds equation. Journal of Tribology, 125(3):558-561.

Xue, H., Fan, Q. (2000) A new analytic solution of the Navier-Stokes equations for microchannel flow. Microscale Thermophysical Engineering, 4(2):125-143.

Ziarani, A.S., Aguilera, R. (2011) Knudsen's permeability correction for tight porous media. Transport in Porous Media, 91(1):239-260.

ÉCOLE DOCTORALE
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Glissement moléculaire dans les matériaux lignocellulosiques : mesures de perméabilité apparente et identification de paramètres morphologiques

Mots clés : bois, matériau poreux, gaz raréfié, perméabilité apparente, nombre de Knudsen, glissement moléculaire, taille de pore.

Résumé : La perméabilité est l'un de paramètres importants pour tous les procédés faisant intervenir des transferts couplés de chaleur et de masse. Sa valeur est directement liée à la morphologie du réseau de pores, clairement double échelle dans le cas du bois. Il existe plusieurs outils d'investigation 3-D par exemple la micro-tomographie voire nano-tomographie pour décrire la morphologie des pores. Néanmoins, ces investigations 3-D échouent pour les plus petits pores dans le bois, qui peuvent avoir une taille largement inférieure au micromètre. Ce travail de thèse utilise l'effet du libre parcours moyen du gaz sur la perméabilité apparente pour identifier la taille des pores utilisés par le cheminement du fluide.
Une approche équilibrée entre expérimentation et modélisation est proposée. Dans la première partie du travail, nous avons développé un dispositif original destiné à mesurer la perméabilité apparente sur une large plage de niveau de pression moyenne. Ce dispositif ne comporte pas de débitmètre : le flux massique est simplement obtenu par la relaxation de la différence de pression entre deux réservoirs de volume connu.
Ce dispositif a permis de mesurer la perméabilité apparente en fonction de la pression moyenne pour différents matériaux. Les valeurs obtenues de perméabilité intrinsèque sont en bon accord avec les publications précédentes.
L'effet de la pression moyenne sur la perméabilité apparente a été analysé pour identifier des paramètres structuraux des milieux poreux. Partant d'un agencement série/parallèle de pores, les paramètres structuraux sont identifiés par méthode inverse en tirant profit du changement de régime d'écoulement avec le nombre de Knudsen (du régime de Darcy vers le régime de glissement moléculaire lorsque le nombre de Knudsen passe de zéro à l'infini).
Cette approche a été validée avec des membranes à pore monodisperse grâce à une observation en microscopie électronique à balayage. Les paramètres ont ensuite été identifiés sur des échantillons de bois, selon différentes directions et sur des matériaux à base de bois. Ils confirment certaines données de la littérature, et apportent un éclairage nouveau, notamment sur les chemins de migration transverse chez le hêtre.

Title : Gas slippage in lignocellulosic materials : measurement of apparent permeability and identification of morphological parameters

Keywords: wood, porous material, rarefied gas, apparent permeability, Knudsen number, slip flow, pore size.

Abstract: Permeability is one of the important parameters for all processes involving coupled heat and mass transfer. Its value is directly related to the morphology of the pore network, clearly a dual scale organisation in the case of wood. Nowadays, several 3D investigative tools exist, such as micro-tomography or nano-tomography. However, these 3-D investigations fail for the smallest pores active in fluid flow in wood, due to their submicron size. The present work takes advantage of the effect of the mean free path on the apparent gaseous permeability to identify the pore size of the pore network.
A balanced approach between experimentation and modelling is proposed. In the first part of the work we have developed an original device for measuring the apparent permeability over a wide range of average pressure. This device was conceived to work without flowmeter: the mass flow is obtained by the relaxation of the pressure difference between two tanks. This device was used to measure the apparent permeability as a function of the average pressure for different materials.
The intrinsic permeability values obtained are in good agreement with literature data.
The effect of the average pressure on the apparent permeability was analysed to identify structural parameters of the porous media. Starting from a serial / parallel arrangement, the structural parameters are identified by inverse method taking advantage of the dependence of the flow regime with Knudsen's number (from Darcy's regime to pure molecular slip regime when Knudsen's number shifts from zero to infinity).
This approach was validated with a monodisperse membrane, whose pore size was determined using a scanning electron microscopy. Structural parameters were then identified on wood samples, measured along different directions and on wood-based materials. They confirm literature data and bring new outcomes, namely regarding the fluid pathway in beech in radial and tangential directions.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France