



HAL
open science

Transferts couplés chaleur/masse dans les matériaux de construction biosourcés : investigation expérimentale et théorique du non-équilibre local

Arnaud Challansonnex

► To cite this version:

Arnaud Challansonnex. Transferts couplés chaleur/masse dans les matériaux de construction biosourcés : investigation expérimentale et théorique du non-équilibre local. Matériaux composites et construction. Université Paris Saclay (COMUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLCO22 . tel-02164432

HAL Id: tel-02164432

<https://theses.hal.science/tel-02164432>

Submitted on 25 Jun 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Transferts couplés chaleur/masse dans les matériaux de construction biosourcés : investigation expérimentale et théorique du non-équilibre local

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée à CentraleSupélec

École doctorale n°579 : sciences mécaniques et énergétiques,
matériaux et géosciences (SMEMAG)
Spécialité de doctorat : Energétique

Thèse présentée et soutenue à Gif sur Yvette le 19/03/2019 par

Arnaud Challanonnex

Composition du Jury :

Romain Rémond MdC, ENSTIB (–LERMAB)	Rapporteur
Thierry Duforestel Chercheur HDR, EDF R&D	Rapporteur
Denis Flick Professeur, AgroParisTech (– GENIAL)	Examineur
Philippe Coussot Professeur, ENPC (– NAVIER)	Président
Samira Kherrouf Ingénieur docteur, ADEME	Examinatrice
Julien Colin MdC, CentraleSupélec (– LGPM)	Invité
Patrick Perré Professeur, CentraleSupélec (– LGPM)	Directeur de thèse

Table des matières

Liste des symboles	5
Remerciements	9
Introduction générale	11
1 Revue de littérature	13
1.1 Energétique du bâtiment et matériaux biosourcés	13
1.1.1 L'énergétique du bâtiment : un enjeu actuel majeur	13
1.1.2 Les matériaux biosourcés	15
1.2 Transferts couplés chaleur masse dans le domaine de la construction . .	21
1.2.1 Des problèmes de condensation à une modélisation des transferts couplés	21
1.2.2 Influence des transferts de vapeur et des matériaux hygroscopiques sur la consommation d'énergie	22
1.2.3 Mesures expérimentales des paramètres hygrothermiques	23
1.2.4 Modèle de transferts couplés obtenus par la méthode de prise de moyenne	25
1.3 Une limite des modèles traitant le couplage chaleur-masse : le non- équilibre local	32
1.3.1 Des limites des modèles de transferts couplés	32
1.3.2 Non-équilibre thermodynamique local	33
1.3.3 Modélisation des configurations double échelle	33
1.3.4 Modèles à microstructures réparties et effet mémoire	35
1.3.5 Sorption retardée et relaxation moléculaire	38
1.4 Conclusion	38
2 Synthèse en français	41
3 Impact du couplage chaleur masse sur la caractérisation des maté- riaux isolants hygroscopiques	59
3.1 Introduction	59

3.2	On the importance of heat and mass transfer coupling for the characterization of hygroscopic insulation materials	61
	Bibliographie de l'article	75
4	Détermination de la diffusivité massique de différents matériaux de construction basée sur l'analyse inverse de l'évolution de l'humidité relative en face arrière	81
4.1	Introduction	81
4.2	Mass diffusivity determination of various building materials based on inverse analysis of relative humidity evolution at the back face of a sample	83
	Bibliographie de l'article	97
5	Détermination expérimentale des fonctions mémoires sur des échantillons de petite taille	101
5.1	Introduction	101
5.2	Non-Fickian diffusion in biosourced materials : Experimental determination of the memory function using minute samples	103
	Bibliographie de l'article	118
6	Prédiction du déphasage entre humidité relative et teneur en eau	123
6.1	Introduction	123
6.2	Non-Fickian diffusion in biosourced materials : Prediction of the delay between relative humidity and moisture content	125
	Bibliographie de l'article	143
	Conclusions générales et perspectives	149
	Bibliographie	153
	Table des Figures	161
A	Complément sur la formulation macroscopique avec effet mémoire	163
A.1	Modélisation du non-équilibre avec des fonctions mémoires	163
A.2	Implémentation numérique	164
B	Complément sur le dispositif expérimental	167
B.1	Principe général	167
B.2	Fonctionnement des différents éléments	168
B.2.1	Enceinte climatique	168
B.2.2	Système de pesé	170
B.2.3	Porte-échantillon	170
B.2.4	Ensemble mobile	173
B.2.5	Contacteurs	174

B.3	Contrôle du dispositif	174
B.3.1	Cycle de fonctionnement	174
B.3.2	Boitier de contrôle et unité de communication	176

Liste des symboles

Lettres grecques

α	amplitude du terme exponentiel
λ	conductivité thermique
μ	coefficient de résistance à la vapeur d'eau ou viscosité dynamique
$\nabla \cdot$	divergence
∇	gradient
ω	fraction massique
∂	dérivé partielle
ψ	potentiel gravitationnel
ρ	masse volumique
τ	tortuosité ou temps caractéristique
ε	fraction volumique
φ	fonction mémoire

Lettres latines

\mathbf{D}	tenseur de diffusion
\mathbf{f}	coefficient de diffusion adimensionné
\mathbf{J}_k	flux diffusif du composant k
\mathbf{J}_q	flux de chaleur
\mathbf{n}	vecteur normal unitaire
\mathbf{v} ou u	vecteur vitesse
$\langle \dot{m} \rangle$	tau massique de changement de phase
A	aire du volume
a_w	isotherme de sorption (activité de l'eau)

c	concentration molaire
C_p	capacité thermique massique
E	énergie d'activation de la loi d'Arrhenius
f	coefficient de diffusion réduit
h	coefficient de transfert de chaleur
h	enthalpie spécifique
K	perméabilité intrinsèque
k	coefficient de transfert massique
k	perméabilité relative
L_v	enthalpie spécifique d'évaporation
M	masse molaire
Nc	nombre de couplage adimensionné
p ou P	pression
q_h	flux de chaleur
q_k	flux diffusif du composant k
R	constante des gaz parfaits
T	température
X	teneur en eau

Indices ou exposant

∞	à grande distance de l'interface
a	air
b	eau liée
c	matrice cellulosique ou capillaire
e	électrique
eff	propriété effective
eq	à l'équilibre
g	relative à la phase gazeuse ou géométrique
s	solide
v	vapeur d'eau

vs vapeur d'eau saturante

w (ou l) eau liquide

Exposants

$\bar{\psi}$ moyenne de la variable ψ sur le volume élémentaire représentatif

$\bar{\psi}^\ell$ moyenne intrinsèque de ψ sur la phase phase ℓ

Remerciements

Avant d'aborder le contenu de ce manuscrit je souhaiterai remercier les personnes qui ont participé de près ou de loin à l'élaboration de ce travail de thèse et qui m'ont accompagné durant les presque quatre années passées au LGPM.

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, Patrick Perré pour m'avoir fait confiance dans la conduite de ce projet que je sais lui tenir très à coeur. Merci pour cet investissement de tout les instants, ces conseils qui m'auront fait évoluer et toutes ces idées lumineuses qui ont fait de ce travail ce qu'il est aujourd'hui. J'ai eu le plaisir de travailler avec un grand scientifique et un grand professionnel.

Je tiens ensuite évidemment à remercier Joel Casalinho, ingénieur d'étude au LGPM qui m'a accompagné depuis mon stage de master jusqu'à ma soutenance de thèse. Merci pour ton énorme investissement dans ce projet, pour tes conseils et pour les nombreuses discussions scientifiques que nous avons pu avoir. Je t'ai considéré comme un encadrant à part entière et ca a été un plaisir de travailler avec toi.

Merci également à Floran Pierre qui a encadré mon stage et ma thèse durant les deux premières années. Même si malheureusement tu n'a pas pu suivre le projet jusqu'à son terme, tu y a grandement participé ainsi qu'à ma bonne intégration au sein de l'équipe.

Je tiens ensuite à remercier Thierry Martin et Jean Trubuil pour leur participation au développement du dispositif expérimental. Sans vous tout cela n'aurait pas été possible et ces moments passés ensemble à l'atelier resteront d'excellents souvenirs. Je remercie également Cyril Breton pour son aide sur Avizo et ses coup de mains au jour le jour, ainsi que Nathalie Rucassier pour les acquisition sur le microscope électronique. Je remercie également l'ensemble de l'équipe technique du LGPM pour son aide au quotidien.

En dehors du LGPM, je me dois également de remercier Hanane Meliani de la Fabrique (anciennement LISA) pour son aide précieuse sur le développement du dispositif expérimental.

Je remercie également l'ensemble des membres du jury pour leur présence et l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. Merci à Philippe Coussot d'avoir accepté de présider le jury, à Thierry Duforestel et Romain Rémond d'en avoir été rapporteur. Je remercie également Denis Flick, Samira Kherrouf et Julien Colin pour leur implication et leurs questions pertinentes.

Je remercie chaleureusement l'ensemble des membres du LGPM, permanents ou

doctorants qui ont fait de ces quatre années une expérience très agréable. Je ne me risquerai pas à citer des personnes en particulier au risque d'en oublier d'autre, mais sachez que j'ai beaucoup apprécié de travailler à vos cotés et j'espère que nous nous recroiserons.

Enfin je remercie également ma famille et mes proches pour leur présence à mes cotés durant toutes ces années.

Introduction générale

Le secteur du bâtiment est actuellement le plus gros consommateur d'énergie en France. Afin de limiter ces consommations, le concepteur doit être en mesure de les simuler correctement, ce qui nécessite des analyses prenant en compte de multiples phénomènes physiques. En particulier, la question des transferts couplés chaleur masse a fait l'objet ces dernières années d'un surcroît d'intérêt de la part de la communauté scientifique. En effet, il est peu à peu apparu que les transferts de masse avaient une influence non négligeable sur le comportement énergétique global d'un bâtiment. Cette influence relative est d'autant plus importante que les réglementations thermiques récentes imposent des déperditions thermiques de faible niveau.

En parallèle, la volonté de diminuer l'impact environnemental des bâtiments lors de leur phase de construction pousse à développer l'utilisation de matériaux biosourcés. Ces matériaux, issus de la biomasse d'origine animale ou végétale ont en effet d'excellentes caractéristiques environnementales. Ils ont également la particularité d'être très hygroscopiques. Cette caractéristique peut d'ailleurs présenter des avantages non négligeables en terme de confort hygrothermique des habitants. Cependant, la contrepartie est qu'une importante hygroscopicité des matériaux utilisés complique fortement les simulations du comportement du bâtiment. En effet, les données expérimentales présentent des différences non négligeables avec les sorties des modèles.

En particulier, les matériaux fibreux pour l'isolation, tels que les panneaux de fibres de faible densité, concentrent toutes les difficultés car ils sont peu conducteurs thermiquement, très hygroscopiques et très diffusifs à la vapeur d'eau. En régime transitoire, cela implique deux conséquences :

- le couplage chaleur masse est exacerbé,
- les phases de l'eau ne sont pas à l'équilibre localement.

Ce second phénomène entraîne différents effets aboutissant à une mauvaise prédiction des consommations énergétiques. Par exemple, la diffusivité mesurée en laboratoire en régime permanent sous estime la vitesse du transfert en régime transitoire. Autre exemple, l'apparition d'un déphasage entre humidité relative et teneur en eau.

Ce travail se propose donc, grâce à une analyse détaillée des phénomènes mis en jeu et des propositions innovantes, d'améliorer la prédiction des transferts hygrothermiques dans ces matériaux. Réalisé au laboratoire de génie des procédés et matériaux (LGPM) de *CentraleSupélec*, il repose sur un équilibre entre modélisation physique, simulations numériques et résultats expérimentaux originaux.

Ce manuscrit est présenté sous la forme d'une thèse par publications. Il contient six chapitres et deux annexes. Les deux premiers chapitres ainsi que les annexes sont rédigés en français, les autres le sont sous la forme d'articles scientifiques et sont donc en anglais.

Le premier chapitre se base sur des éléments bibliographiques. Il y est d'abord présenté le contexte global de l'étude. Sont ensuite abordés, les transferts couplés chaleur masse dans le domaine de la construction et le problème du non-équilibre local.

Le second chapitre est constitué d'une synthèse en français du travail de thèse. Ce chapitre pourra aider le lecteur à mieux visualiser la cohérence du projet et le guider dans son approche des autres chapitres et annexes. Y seront rappelés les principaux résultats obtenus dans chacun des chapitres suivants et le lien fait entre eux. Si la lecture de cette synthèse peut à elle seule permettre de comprendre la démarche suivie, de nombreux aspects d'importance ont évidemment du être omis.

Le troisième chapitre propose une analyse détaillée du couplage chaleur masse dans les matériaux fibreux pour l'isolation au travers d'une expérience originale et de simulations. Y est également proposée une analyse des phénomènes mis en jeu aboutissant à la définition d'un nombre adimensionnel caractérisant le couplage.

Le quatrième chapitre propose une campagne d'essais utilisant une méthode récemment développée au laboratoire. Celle-ci consiste à identifier la diffusivité massique de matériaux de construction en utilisant l'évolution de l'humidité relative sur la face arrière d'échantillons dont l'humidité est contrôlée en face avant. En parallèle, et en marge du fil directeur du projet, une analyse des propriétés diffusives des matériaux basée sur des analyses géométriques est proposée.

Le cinquième chapitre propose une campagne expérimentale visant à caractériser les propriétés diffusives microscopiques de matériaux biosourcés présentant des phénomènes de non-équilibre local. Il se base sur des essais d'adsorption gravimétriques et l'utilisation d'une nouvelle formulation capable d'appréhender ces phénomènes.

Le sixième chapitre propose une campagne expérimentale utilisant un nouveau dispositif développé au cours de ce projet. Celui-ci permet de mesurer simultanément l'évolution de l'humidité relative en face arrière d'un échantillon ainsi que sa teneur en eau alors que l'humidité relative sur sa face avant est contrôlée. Ce chapitre, en utilisant les résultats des précédents, permet de vérifier l'aspect prédictif de la nouvelle formulation et donc la cohérence globale du projet.

Le premier annexe détaille la nouvelle formulation utilisée dans ce travail ainsi que son implémentation.

Le second annexe détaille le dispositif expérimental utilisé au chapitre six, celui-ci ayant représenté une part très importante du temps investi dans le projet.

Chapitre 1

Revue de littérature

1.1 Energétique du bâtiment et matériaux biosourcés

Dans cette partie, nous traiterons d'abord du contexte général de l'étude qui concerne la consommation énergétique des bâtiments. Nous aborderons ensuite l'utilisation de matériaux biosourcés dans le domaine de la construction qui apparaît comme un secteur d'avenir. Nous en profiterons pour présenter trois d'entre eux, largement utilisés au long de ce travail de thèse.

1.1.1 L'énergétique du bâtiment : un enjeu actuel majeur

Le secteur du bâtiment est le secteur économique ayant la plus grosse consommation d'énergie aujourd'hui en France. Celle-ci serait de plus de 67 millions de tonnes équivalent pétrole, soit 45% de la consommation d'énergie finale totale. De plus, il générerait plus de 78 millions de tonnes de CO₂, ce qui correspond à 23% des émissions nationales [ADEME, 2015]. Le poste de chauffage est le principal contributeur avec 60% de l'énergie consommée. Il est par ailleurs générateur d'inégalités puisque le coût annuel de la facture de chauffage peut aller de 250 euros pour des maisons dites basse consommation, jusqu'à 1800 euros pour des maisons mal isolées [Borloo et Apparü, 2010].

La réduction de ces consommations doit donc être prise en compte dès la conception du bâtiment. Ainsi, le concepteur peut jouer sur différents aspects tels que la présence de double vitrage, d'un système de ventilation, d'un système de chauffage performant ou d'une bonne isolation. Pour ce faire, il est désormais aidé de logiciels permettant de simuler le comportement énergétique du bâtiment [Clarke, 2007]. Le fonctionnement de ces logiciels est en générale relativement similaire : l'utilisateur fournit des données sur le bâtiment telles que sa géométrie, les matériaux de construction utilisés, les équipements présents, la localisation ou le taux d'occupation. A partir de données climatiques correspondant à la localisation, le logiciel va pouvoir établir les consomma-

tions énergétiques sur une période type. Ces logiciels, très nombreux [Crawley *et al.*, 2008], sont plus ou moins complexes, différant par exemple dans leur façon de prendre en compte la ventilation, les apports solaires ou les transferts couplés chaleur masse. En France, certains d'entre eux ayant reçu une certification du CSTB (Centre Scientifique et Technique du Bâtiment) peuvent effectuer un calcul réglementaire pour vérifier que le bâtiment respecte les exigences en terme de consommation d'énergie [MEDDE, 2011].

Ces exigences sont définies par la réglementation thermique. Ces réglementations sont apparues dès 1974 suite au premier choc pétrolier [EDF, 2013] avec la RT1974. Celle-ci misait sur une réduction de 25 % de la consommation énergétique des bâtiments par rapport à 1950, passant ainsi de 300 à 225 kWhEP/(m².an). Elle visait surtout à diminuer les déperditions de chaleur par un renforcement de l'isolation. Cette réglementation n'aura de cesse d'évoluer au fil des années, gagnant à chaque fois en exigence et en sophistication. Ainsi, un second choc pétrolier en 1979 donnait lieu à une nouvelle réglementation, la RT1982. Celle-ci imposait une diminution de 20% des dépenses par rapport à la RT1979, soit 170 kWhEP/(m².an). A la différence de son aînée, elle prenait désormais en compte les besoins de chauffage au travers des apports extérieurs et intérieurs. Une nouvelle réglementation en 1988 prenait cette fois en compte les équipements du bâtiment tels que la production d'eau chaude sanitaire. Par la suite, la RT2000 renforçait les diverses exigences avec une diminution de 20% des consommations, soit 130 kWhEP/(m².an) pour les bâtiments résidentiels, et de 40% pour les bâtiments tertiaires, tout en prenant en compte le confort d'été. Enfin, la RT2005 était la première à prendre en compte la conception bioclimatique (soit une architecture tirant le meilleur parti de son environnement) ainsi que l'utilisation des énergies renouvelables avec comme objectif une amélioration de 15% par rapport à la réglementation précédente. La RT2012, toujours en vigueur, se montrait encore plus ambitieuse que ses aînées. En affichant un objectif de consommation d'énergie primaire de 50 kWhEP/(m².an) elle visait quasiment une division par 3 des consommations là où celles-ci n'avaient été que divisées par 2 depuis 1975. Les différents critères rapportés à ces exigences sont modulés selon la localisation géographique, l'altitude, le type d'usage du bâtiment et pour les maisons individuelles, la surface habitable. La future RT2020 visera à généraliser les bâtiments à énergie positive (bâtiments qui produisent plus d'énergie qu'ils n'en consomment).

Cependant, ces différentes exigences concernent la consommation du bâtiment une fois construit, excluant les dépenses énergétiques liées par exemple à la fabrication des matériaux et à leur recyclage. C'est pourquoi, suite à la *Loi de transition énergétique pour la croissance verte* a été mis en place le label *E+C-* [MTES, 2017] qui vise à limiter l'empreinte carbone du bâtiment en se basant entre autre sur l'analyse de cycle de vie (ACV) des produits de construction. Cet outil permet d'analyser l'impact environnemental d'un produit de sa production jusqu'à son traitement en fin de vie en passant par sa phase d'usage [Wolf *et al.*, 2012]. Cette approche n'est cependant pas nouvelle puisque dès 2004, le label HQE (pour haute qualité environnementale)

visait à inscrire la construction dans une démarche durable. Le constructeur est donc incité à utiliser des matériaux plus respectueux de l'environnement, par exemple des matériaux biosourcés qui sont recommandés dans la loi [MEEM, 2016].

1.1.2 Les matériaux biosourcés

Les matériaux biosourcés dans la construction

Les matériaux biosourcés sont des matériaux issus pour tout ou partie de la biomasse. Dans le domaine de la construction, on les retrouve sous une large gamme de produits destinés à de multiples usages tel que l'isolation (laines de fibres végétales ou animales, de textile recyclé, ouate de cellulose, bottes de paille ...), la structure (bois massif) ou bien en usages mixtes avec les mortiers et bétons (béton de chanvre, de bois, de lin ...).

Les performances environnementales de ces matériaux sont très bonnes. Ainsi, il a été montré dans [Buchanan et Levine, 1999] que la construction en bois était nettement moins énergivore et émettrice de CO₂ que celles en briques, béton, acier ou aluminium. En effet, les procédés de production sont moins consommateurs en énergie, les déchets peuvent être réutilisés et ces matériaux présentent un caractère renouvelable. Les mêmes conclusions peuvent être retrouvées dans [Florentin *et al.*, 2017] pour le béton de chanvre. Ces bonnes performances s'expliquent majoritairement par l'origine végétale de la plupart de ces matériaux [Peñaloza *et al.*, 2016, Perez-Garcia *et al.*, 2005]. En effet, ceux-ci agissent comme des puits de carbone en stockant du CO₂ par photosynthèse pendant leur phase de croissance et en ne le relâchant que pendant leur processus de décomposition ou à leur incinération. D'ailleurs, les scénarios de fin de vie retenus ainsi que les échelles de temps observées peuvent avoir un fort impact quant aux performances affichées [Pawelzik *et al.*, 2013]. Dans un autre ordre d'idée, l'exploitation de ces matériaux peut permettre la reconversion de filières moribondes et participer à l'essor d'économies locales et rurales. On pourra ainsi retenir l'exemple de la laine de mouton ([Zabalza Bribián *et al.*, 2011]) dont les débouchés classiques se raréfient. Notons également qu'une production locale pourra diminuer l'impact environnemental du transport.

Au-delà de l'aspect environnemental, les performances techniques de ces matériaux n'ont rien à envier à celles des matériaux de construction classiques. Concernant les isolants fibreux, les conductivités thermiques sont proches (avec des valeurs autour de $0.04W.m^{-1}.K^{-1}$) de matériaux d'origine minérale tel que la laine de roche [Aditya *et al.*, 2017]. Ils peuvent donc tout à fait être utilisés pour des constructions exigeantes en terme de performances énergétiques. D'ailleurs, bien que les matériaux isolants soient au cœur de ce travail de thèse, n'oublions pas qu'un matériau biosourcé comme le bois est utilisé depuis toujours dans le domaine de la construction pour bien d'autres usages [Fleury et Chiche, 2006]. On le retrouve par exemple en structure (charpente, ossature, plancher, plafond...), en parement et finition (bardage, couverture, escalier...) ou pour la réalisation de menuiseries. Cet intérêt pour ce matériau s'explique par ses

bonnes propriétés mécaniques et thermiques :

- une bonne résistance en traction et en compression,
- une rigidité spécifique dans la direction longitudinale équivalente à l'acier,
- la conductivité thermique la plus faible des matériaux structurels,
- une bonne résistance au feu,
- une faible effusivité thermique (produit une température de contact agréable).

Présentation des matériaux utilisés

Cette partie présente plus en détail trois des matériaux biosourcés utilisés par la suite dans le travail de thèse : le bois de résineux, les panneaux de fibres de faible densité (ou LDF pour low density fiberboard) et les panneaux de fibres de moyenne densité (MDF pour medium density fiberboard). Ces matériaux étant tous à base de bois, cette section commencera par des explications générales le concernant, basées sur les travaux de Keller [Keller, 1994].

Le bois est un matériau végétal qui compose la majeure partie du tronc des plantes ligneuses. Ce matériau étant très anisotrope on le décrit habituellement selon trois directions de références qui peuvent être visualisées en Figure 1.1 :

- La direction longitudinale,
- La direction radiale passant par la moelle de l'arbre,
- La direction tangentielle, parallèle à l'axe de l'arbre et tangente aux cernes d'accroissement, qui est perpendiculaire aux deux précédentes.

Les plans associés à chacune de ces directions sont appelés plans ligneux. Une coupe dans la section transversale d'un tronc d'arbre permet d'en observer les différentes zones (Figure 1.2). On visualise ainsi que le bois croît par succession de couches coaxiales, la partie la plus ancienne se trouvant au centre, la plus récente à l'extérieur. En partant du centre, nous avons donc :

- la moelle qui correspond à la croissance primaire de l'arbre,
- Le duramen qui est la partie interne du tronc. Il correspond aux zones d'accroissement les plus anciennement formées et ne comporte plus de cellules vivantes. Appelé également *bois de coeur* ou *bois parfait*, il s'agit d'un bois dur, compact, dense et sec souvent plus sombre que l'aubier. C'est cette partie de l'arbre qui sera utilisée pour la réalisation du bois de construction,
- L'aubier qui correspond aux zones d'accroissement les plus récemment formées où circule la sève,
- L'écorce, constituée du liber et du suber.

Les arbres les plus utilisés dans le domaine de la construction sont les conifères où résineux (pin, épicéa, douglas, ...). Leur structure anatomique est plus simple que celle des feuillus (chêne, peuplier, bouleau...), l'autre grande famille d'arbre présente dans les climats tempérés. Elle présente une grande anisotropie qui va jouer sur les propriétés

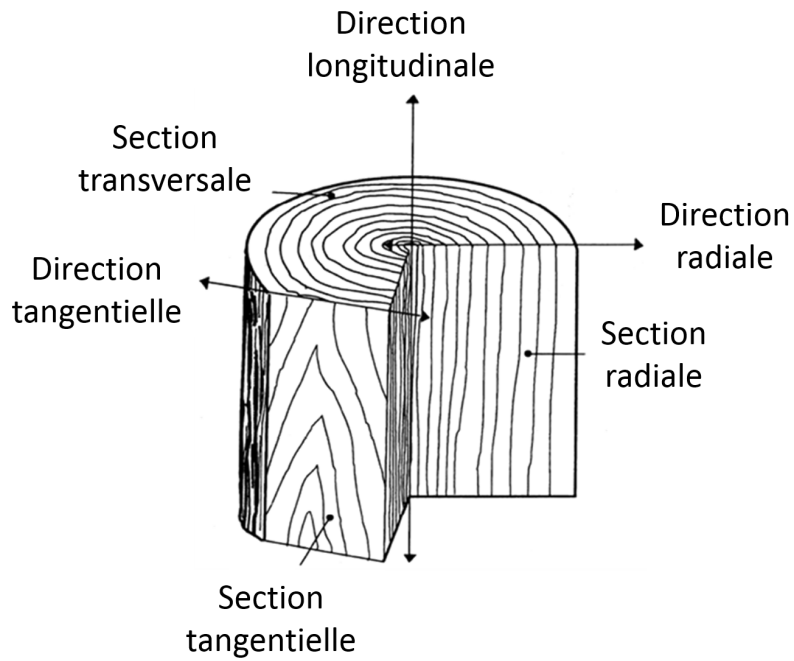


FIGURE 1.1 – Différentes directions d'étude du bois. Extrait de [Guitard, 1987]

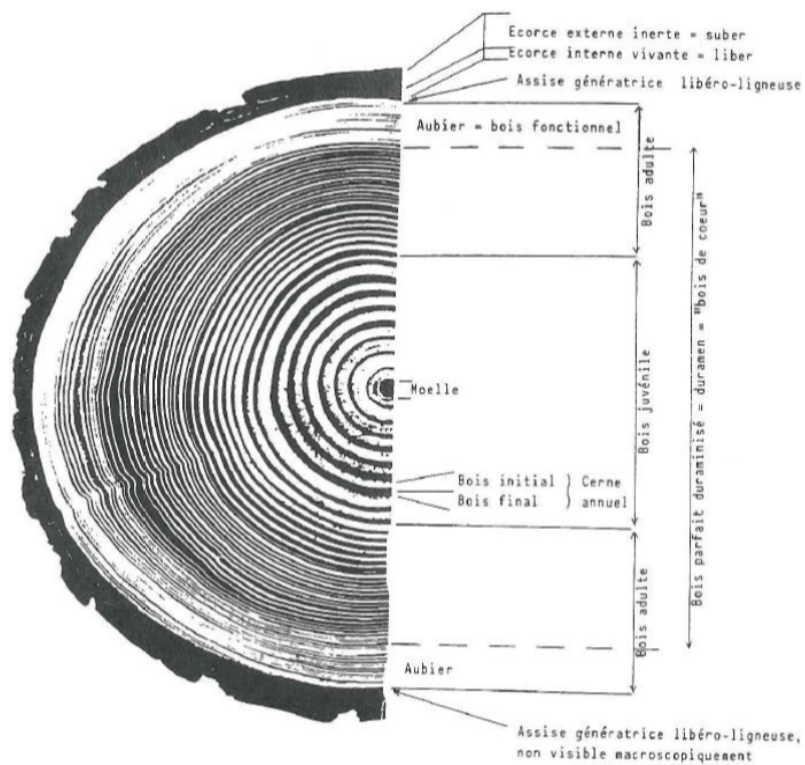


FIGURE 1.2 – Structure d'un tronc d'arbre. Extrait de [Grosser, 1977]

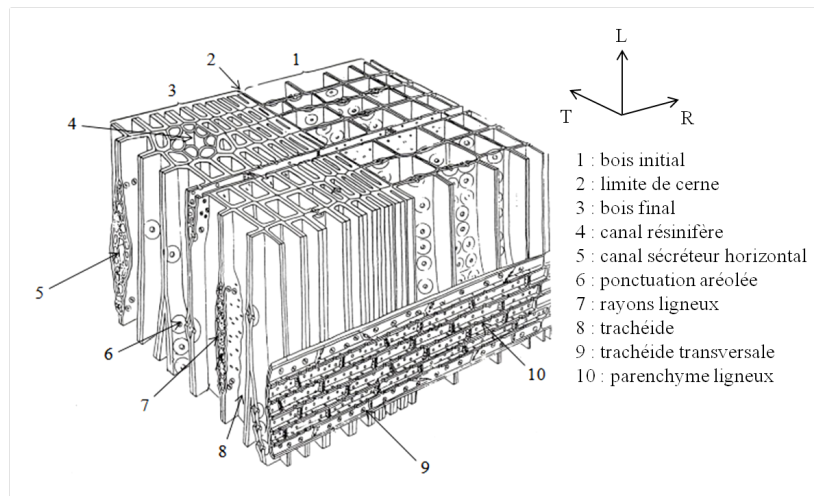


FIGURE 1.3 – Arrangement cellulaire d'un bloc de conifère. Extrait de [Grosser, 1977]

hygrothermiques du matériau. La figure 1.3 montre l'arrangement cellulaire d'un bloc de conifère dans les trois plans de coupe principaux d'étude. Elle fait apparaître :

- Les trachéides verticales, qui sont des cellules ayant un rôle de conduction mais également de soutien de l'arbre. Elles sont alignées dans le sens longitudinal du tronc. Elles possèdent des ponctuations aréolées permettant de faire circuler la sève d'une trachéide à une autre trachéide et également des ponctuations de champs de croisement mettant en contact une trachéide à une cellule de rayon ligneux. Elles constituent 90% de l'ensemble d'un bois résineux.
- Les rayons ligneux, toujours orientés dans le sens radial, qui ont un rôle de conduction.
- Les canaux résinifères, qui ne sont présents que dans certaines essences et peuvent être disposés soit dans le sens longitudinal soit dans le sens radial.

La figure montre également le bois initial et le bois final. Le bois initial correspond aux cellules formées à la reprise végétative au printemps. On constate que les trachéides possèdent de plus grandes cavités. Le bois final correspond aux cellules formées à la fin de la saison estivale qui possèdent des cavités plus fines et des parois plus épaisses. C'est cette alternance qui donne les cernes d'accroissement.

Ajoutons que les différentes cellules mentionnées précédemment sont protégées par une paroi pectocellulosique. Leur capacité à adsorber l'eau est responsable du comportement hygroscopique de ce type de matériau. Cette caractéristique n'est pas spécifique aux cellules de bois mais s'applique à l'ensemble des cellules végétales.

Concernant les panneaux de fibres, deux catégories sont présentées :

- Le MDF, de densité moyenne. On le retrouve surtout dans l'aménagement, la décoration intérieure et l'ameublement. Ce matériau est constitué de fibres de

bois (les trachéides), de colle urée-formaldéhyde et de paraffine qui sont formés en panneaux par l'application de contraintes de pression et de température. Pratique car disponible en de multiples épaisseurs et facilement découppable, sa masse volumique est comprise entre 600 et 800 kg.m⁻³,

- Le LDF, de densité faible. Ce matériau est formé de fibres de bois et éventuellement d'un liant synthétique et d'additifs. Utilisé dans le domaine de l'isolation, il présente des performances équivalentes à celle des laines minérales. Sa masse volumique est comprise entre 50 et 400 kg.m⁻³.

Deux procédés existent pour la réalisation de panneaux de fibres :

- Le procédé à sec, avec défilage sous l'action de la vapeur et d'un procédé mécanique, collage par pulvérisation de colle et/ou résine, pressage à froid puis à chaud, puis stabilisation. C'est ce procédé qui est utilisé pour la réalisation du MDF.
- Le procédé humide, similaire au procédé papetier où après défilage les fibres sont diluées avec de l'eau pour obtenir une pâte qui sera ensuite moulée puis séchée. En se référant au fabricant, c'est ce procédé qui est utilisé pour la réalisation du LDF étudié dans ce travail. Il ne comporte donc pas de liant synthétique.

Ces panneaux présentent l'avantage de permettre l'utilisation des déchets du bois, notamment les morceaux trop petits qui ne pourraient pas servir à produire du bois massif. Ils peuvent comporter des additifs pour améliorer leurs performances selon l'usage qui leur est destiné.

Propriétés hygroscopiques des matériaux biosourcés

Du fait de leur origine végétale ou animale, les matériaux biosourcés présentent un fort caractère hygroscopique. C'est à dire qu'ils ont tendance à absorber l'humidité de l'air. Pour aborder cette question, nous commencerons par définir la teneur en eau d'un matériau qui s'exprime comme suit :

$$X = \frac{m_{humide} - m_{anhydre}}{m_{anhydre}} \quad (1.1)$$

Avec $m_{anhydre}$ la masse anhydre du matériau. Cette grandeur désigne la masse du matériau complètement dépourvu d'eau. Par convention, l'état anhydre est obtenu après un séjour en étuve à 103 ° C jusqu'à stabilisation de sa masse (Norme *NF B51-00*). La teneur en eau X est sans dimension et peut excéder les 100%.

On distingue différents états de l'eau dans le bois :

- L'eau hygroscopique également appelée eau liée est l'eau contenue dans les parois cellulaires,
- L'eau libre ou eau capillaire se trouve elle dans les cavités cellulaires ou lumens. Ses propriétés thermodynamiques sont proches de l'eau liquide,
- L'eau sous forme de vapeur.

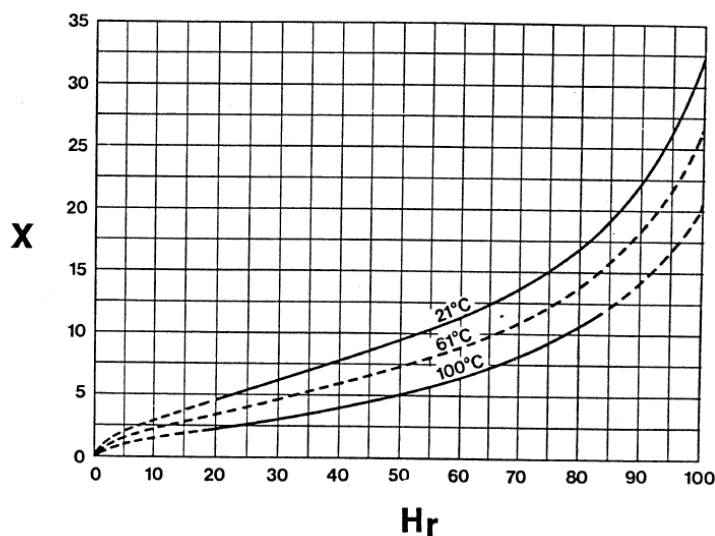


FIGURE 1.4 – Exemple d'isothermes de sorption. Extrait de [Siau, 1984]

Les liaisons eau-solide étant supérieures aux liaisons des molécules d'eau entre elles, l'enthalpie de l'eau liée est inférieure à celle de l'eau liquide et il faut donc plus d'énergie pour l'extraire. On appelle ce supplément d'énergie chaleur différentielle de sorption. L'eau libre s'évaporera donc en premier lorsqu'un morceau de bois vert est exposé aux conditions atmosphériques. Quand sa teneur en eau est d'environ 25-30%, le bois ne contient plus d'eau libre dans ses cavités cellulaires alors que ses parois cellulaires restent par contre saturées d'eau liée. On dit qu'on est au point de saturation des fibres (PSF). En dessous de cette teneur en eau, on dit qu'on est dans le domaine hygroscopique qui nous intéresse plus particulièrement ici puisqu'il s'agit de l'état dans lequel se trouve normalement le bois utilisé dans la construction. Ce domaine se caractérise par un équilibre entre la teneur en eau du bois et l'humidité de l'air ambiant. Une relation existe entre ces deux grandeurs. Les courbes représentatives de cette relation sont dépendantes de la température, on parle d'isothermes de sorption [Siau, 1984]. Un exemple est visible en Fig 1.4 pour trois températures différentes. Il faut savoir que leur forme globale est similaire pour toutes les essences de bois. Par ailleurs, les phénomènes de sorption et désorption ne sont pas réversibles car ils entraînent des réarrangement macromoléculaires [Rémond *et al.*, 2018]. On observe donc un phénomène d'hystérésis.

1.2 Transferts couplés chaleur masse dans le domaine de la construction

Dans cette partie, nous verrons tout d'abord rapidement l'évolution historique de l'approche des transferts chaleur masse dans le domaine de la construction. Nous évoquerons ensuite les avantages que peuvent apporter les matériaux biosourcés dans ce domaine. Il sera ensuite donné un aperçu des méthodes expérimentales utilisées pour caractériser ces matériaux et enfin une étude détaillée du modèle prenant en compte les transferts couplés utilisé dans ce travail de thèse.

1.2.1 Des problèmes de condensation à une modélisation des transferts couplés

En nous basant notamment sur les travaux de Hens [Hens, 2015], nous reviendrons dans cette partie sur l'historique de l'étude des transferts d'humidité dans le domaine du bâtiment.

L'intérêt pour les transferts d'humidité dans les parois des habitations apparaît dès les années 30 aux États-Unis lorsque furent remarquées les premières pathologies liées aux transferts de masse. Ainsi, dès 1937 Teesdale [Teesdale, 1937] recommande l'installation de pare-vapeur (membranes imperméables ou peu perméables à la vapeur) et une bonne ventilation des combles dans les climats froids où la condensation de la vapeur d'eau est la plus susceptible de se produire. Durant la plus grande partie du 20^e siècle, le moteur de la recherche concernant les transferts de masse dans les parois sera effectivement d'éviter les pathologies dues à la présence d'eau liquide. La théorie scientifique menant à ces recommandations était simple à appliquer pour le concepteur : tracer le profil de température à travers la paroi ainsi que le point de rosé des conditions intérieures. Si les deux se croisaient dans l'isolant, la condensation risquait de se produire contre l'enveloppe extérieure. Cette méthode est illustrée sur la figure 1.5 a). Cette approche graphique du problème fut théorisée et améliorée, avec notamment à la fin des années 50 la publication de la méthode Glaser [Glaser, 1958]. Cette méthode, encore largement utilisée et à la base de nombreuses normes nationales, suppose que les flux de chaleur et de vapeur sont découplés. On calcule d'abord le profil de température permettant d'obtenir celui des pressions de vapeur saturante. On calcule ensuite le profil de pression de vapeur. Si les deux profils sont tangents il y a risque de condensation. Cette approche est illustrée sur la figure 1.5 b). Par la suite, les modèles se complexifièrent ajoutant notamment le transport d'eau liquide par capillarité [Vos, 1969].

A partir des années 70, l'essor du calcul numérique permet l'implémentation de codes prenant en compte le couplage chaleur masse, le transport par capillarité ou la dépendance des paramètres à la température et à la teneur en eau. Ces travaux s'inspirent de modèles développés pour la science des sols [Philip et Vries, 1957, Luikov, 1975]. Ils furent progressivement améliorés, prenant par exemple en compte l'influence

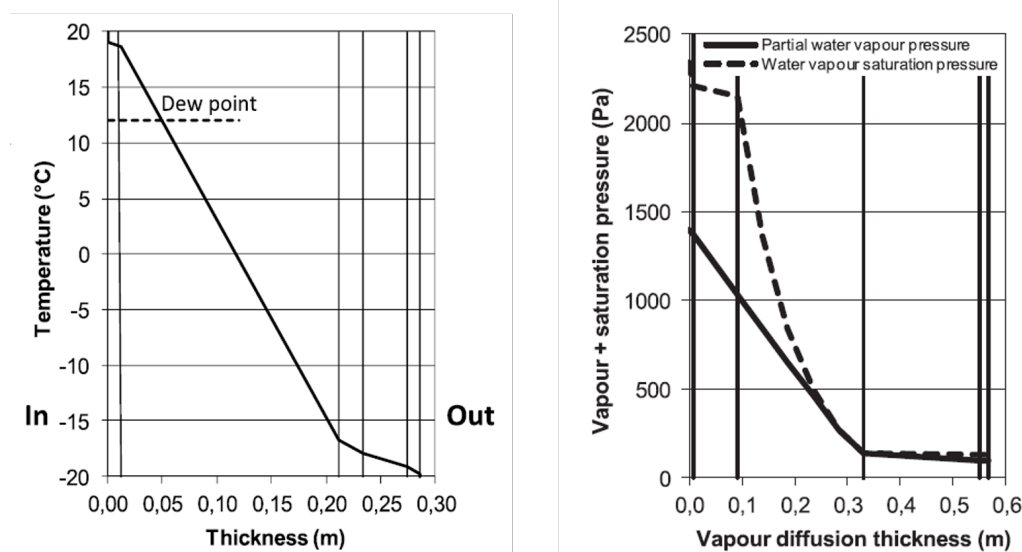


FIGURE 1.5 – gauche :a)Etude du risque de condensation dans un mur selon Teesdale, droite :b)Etude du risque de condensation dans un mur selon Glaser (Image tirées de [Hens, 2015])

du transport de l'air [Kronvall, 1980].

Avec les années 90 et l'augmentation de la puissance informatique, de nombreux modèles peuvent assurer des simulations prenant en compte le couplage chaleur masse. Il existe plusieurs dizaines d'outil permettant d'effectuer ces calculs hygrothermiques [Karoglou *et al.*, 2007]. On citera par exemple WUFI [Künzel, 1995, Karagiozis *et al.*, 2001] ou MATCH [Rode, 1990]. Si les équations implémentées dans ces modèles ont une base similaire (un exemple sera détaillé par la suite), les différences peuvent concerner par exemple, la stratégie numérique, les variables retenues, la dimension du transfert ou la dépendance des paramètres à certaines grandeurs. L'utilisation de ces outils de simulation puissants permet de répondre quant à l'impact des transferts couplés sur la consommation énergétique du bâtiment et notamment sur l'utilisation de matériaux très hygroscopiques comme les biosourcés.

1.2.2 Influence des transferts de vapeur et des matériaux hygroscopiques sur la consommation d'énergie

De par leur forte hygroscopicité, les matériaux biosourcés présents dans l'habitat permettent de réguler l'humidité en absorbant de la vapeur d'eau lorsque celle-ci est trop importante et en relâchant lorsqu'elle est trop faible. Ce faisant, ils agissent comme un matériau tampon. On parlera d'ailleurs de "Moisture buffering effect". Par ailleurs, la variété de leurs comportements diffusifs à la vapeur d'eau, permet une conception hygrothermique réfléchi [Programme HABISOL, 2015, Orosa et Baaliña,

2009]. Or, l'humidité ambiante est l'une des composantes du confort thermique des occupants qui définit la satisfaction du corps par rapport à l'environnement, l'autre étant la température. On peut d'ailleurs définir la zone de confort par un polygone sur un diagramme température/humidité relative. Ainsi, une humidité trop faible pourra entraîner des problèmes de sécheresse de la peau ou des muqueuses [Wolkoff et Kjær-gaard, 2007]. Au contraire, une humidité trop importante peut favoriser l'apparition de micro-organismes comme les champignons [Adan, 1994]. Dans un bâtiment dont l'humidité est contrôlée par une ventilation mécanique, l'utilisation de matériaux biosourcés permettra donc de réduire la facture énergétique en limitant l'usage de celle-ci [Woloszyn *et al.*, 2009]. Cette part peut être importante pour des bâtiments bien isolés. On parlera dans ce cas d'économie d'énergie indirectes.

Osayintola et Simonson dans [Osanyintola et Simonson, 2006] quantifient quant à eux les économies d'énergie directes. Ces économies concernent à la fois les besoins en chauffage et en climatisation. Concernant le chauffage, les matériaux hygroscopiques capturent l'humidité due à la présence des habitants, procurant ainsi un surcroît de chaleur. Concernant les périodes chaudes, ils font baisser l'enthalpie en capturant l'humidité et limitent l'énergie nécessaire au refroidissement. Cependant, du fait que les matériaux vont relâcher leur humidité lors des périodes d'inoccupation, ces économies ne concernent que le pic de consommation. Des économies sur l'ensemble des périodes d'occupation et d'inoccupation ne sont viables que si une stratégie de régulation de la température et de l'humidité adaptée est mise en place. Dans ce cas, les auteurs estiment les potentielles économies d'énergie entre 2 et 3 % pour le chauffage et 5 et 30% pour la climatisation.

1.2.3 Mesures expérimentales des paramètres hygrothermiques

Les outils numériques évoqués précédemment doivent être alimentés par divers paramètres caractérisant les propriétés hygrothermiques des matériaux. Nous verrons dans cette partie quelles peuvent être les méthodes de mesure expérimentales de certains d'entre eux. Nous étudierons ainsi des méthodes de mesure de la diffusivité à la vapeur d'eau, de l'isotherme de sorption et de la conductivité thermique.

Diffusivité à la vapeur d'eau

La méthode de la coupelle permet de mesurer la diffusivité à la vapeur d'eau en régime permanent. Cette technique très simple est bien adaptée à la méthode GLASER évoqué en partie 1.2.1 et fait même l'objet d'une norme internationale (*NF EN ISO 12572*). On utilise un récipient contenant une solution saline saturée. L'échantillon à tester est placé sur la partie supérieure du récipient et les rebords sont étanchéifiés. L'ensemble est placé dans une enceinte climatique contrôlée en température et humidité relative. La solution saline imposant une humidité relative connue et constante à température constante, on connaît les conditions aux limites de l'échantillon. On mesure ensuite le flux de vapeur sortant ou entrant par gravimétrie afin d'en déduire

le coefficient de diffusion. Cette méthode est encore largement utilisée [Rousset *et al.*, 2004, Tarmian *et al.*, 2012, Vololonirina *et al.*, 2014]. Cependant, il est apparu qu'avec des matériaux très perméables, des corrections dues à la résistance de la lame d'air entre la solution et l'échantillon ou à celle de la surface de l'échantillon ne pouvaient pas être négligées [Zohoun *et al.*, 2003]. De même, il est souligné dans [Duforestel, 2015] que sur certains types de matériaux, la non prise en compte du flux advectif à travers l'échantillon a un effet non négligeable sur le résultat.

La diffusivité peut également être mesurée en régime transitoire. Ainsi, Agoua *et al.* dans [Agoua *et al.*, 2001] utilisent deux enceintes climatiques imposant des humidités relatives différentes afin de faire varier les conditions aux limites d'un échantillon. Le coefficient de diffusion est alors retrouvé par méthode inverse en utilisant l'évolution de la masse de l'échantillon. On pourra également citer des méthodes utilisant l'analyse de l'évolution du profil de teneur en eau dans l'échantillon. Le profil peut par exemple être visualisé par résonance magnétique nucléaire [Pel *et al.*, 1996] ou radiographie à neutron [Pleinert *et al.*, 1998].

Enfin, nous citerons le travail réalisé dans notre laboratoire [Perré *et al.*, 2015] consistant à soumettre un échantillon à une perturbation d'humidité relative sur sa face avant et à mesurer l'évolution de l'humidité sur sa face arrière. Le coefficient est alors obtenu par méthode inverse. Une étude similaire est proposée en chapitre 4 de ce document.

Isotherme de sorption

Concernant la mesure des isothermes de sorption, une première méthode correspond à la norme internationale *NF EN ISO 12571*. Il s'agit d'une méthode gravimétrique où les échantillons sont placés dans un récipient contenant une solution saline saturée imposant une humidité relative connue. Contrairement à la méthode de la coupelle, le récipient est hermétiquement fermé et on mesure la masse de l'échantillon une fois l'équilibre atteint. Cette méthode est bien sûr largement utilisée [Almeida et Hernández, 2006, Vololonirina *et al.*, 2014, Champiré *et al.*, 2016]. Elle nécessite cependant des échantillons de poids relativement importants et un excellent contrôle de la température.

On citera également les méthodes dites dynamiques, utilisées dans ce travail de thèse. Il s'agit également de méthodes gravimétriques, mais dans ce cas l'échantillon est placé dans une chambre de mesure dont l'humidité est contrôlée et varie de façon dynamique. Elles permettent en particulier de travailler sur des échantillons très petits. On parle de DVS (Dynamic Vapour Sorption) et ces méthodes sont également largement utilisées [Bingol *et al.*, 2012, Rudy *et al.*, 2017, Houngan, 2008].

Isotherme de sorption

Concernant la mesure de la conductivité thermique, pour une mesure en régime permanent on citera la méthode dite de "la plaque chaude gardée". Il s'agit là encore

d'une méthode de mesure très classique dans le domaine de la construction qui est régie par une norme internationale (*NF EN 12664*). Elle consiste à imposer un flux d'énergie connu constant sur la face avant de l'échantillon alors que sa température sur sa face arrière est contrôlée. On calcul alors la conductivité thermique grâce à une mesure de température sur les deux faces. On retrouve cette méthode pour le calcul de propriétés de matériaux biosourcés [Vololonirina *et al.*, 2014, Damfeu *et al.*, 2016].

Concernant la mesure en régime transitoire, la méthode du ruban chaud consiste à placer un fil chauffant dont le flux sera imposé entre deux échantillon. En relevant la température du fil au cours du temps, on pourra remonter à la conductivité par méthode inverse. Une autre méthode classique est la méthode dite "flash" proposé par Parker *et al.* [Parker *et al.*, 1961]. Elle consiste à appliquer sur la face avant d'un échantillon de faible épaisseur un bref flux de chaleur. La température sur la face arrière de l'échantillon est mesurée. On en déduit la diffusivité thermique par méthode inverse en observant son évolution en fonction du temps. En mesurant la chaleur massique par une autre méthode, on peut donc en déduire la conductivité massique. Ces méthodes sont toujours utilisées pour des mesures sur des matériaux de construction [Lamrani *et al.*, 2017, Souihel *et al.*, 2017, Pierre *et al.*, 2014].

1.2.4 Modèle de transferts couplés obtenus par la méthode de prise de moyenne

Cette partie vise à détailler le modèle permettant de simuler les transferts couplés chaleur masse utilisé dans ce travail de thèse. Ce modèle est résolu numériquement par le code de calcul *Transpore*. La formulation utilisée dans ce code est très complète. Elle considère en effet le bilan d'air sec, qui permet d'obtenir la pression interne et la migration d'eau liée, qui permet de considérer les matériaux fortement hygroscopiques [Perre et Degiovanni, 1990]. Initialement développé pour le séchage, il est également adapté au transferts dans le bâtiment et intègre tous les phénomènes physiques des autres modèles disponibles. Des informations complémentaires peuvent être trouvées dans [Perré et Turner, 1999, Perré, 2015]. La formulation, fortement inspiré des travaux de Whitaker [Whitaker, 1977], n'est pas obtenue par des observations phénoménologiques mais par une méthode de prise de moyenne volumique. Cette technique sera donc abordée dans une première partie avec un exemple détaillé. En seconde partie, les équations du modèle seront présentées.

Méthode de la prise de moyenne

La méthode de prise de moyenne volumique consiste à choisir un volume représentatif contenant suffisamment de pores et à supposer l'ensemble du milieu poreux comme continu et présentant des propriétés équivalentes. On calcul alors rigoureusement les équations macroscopiques à partir des équations d'équilibre microscopique en utilisant des moyennes volumiques. Cette technique a notamment permis de démontrer la loi

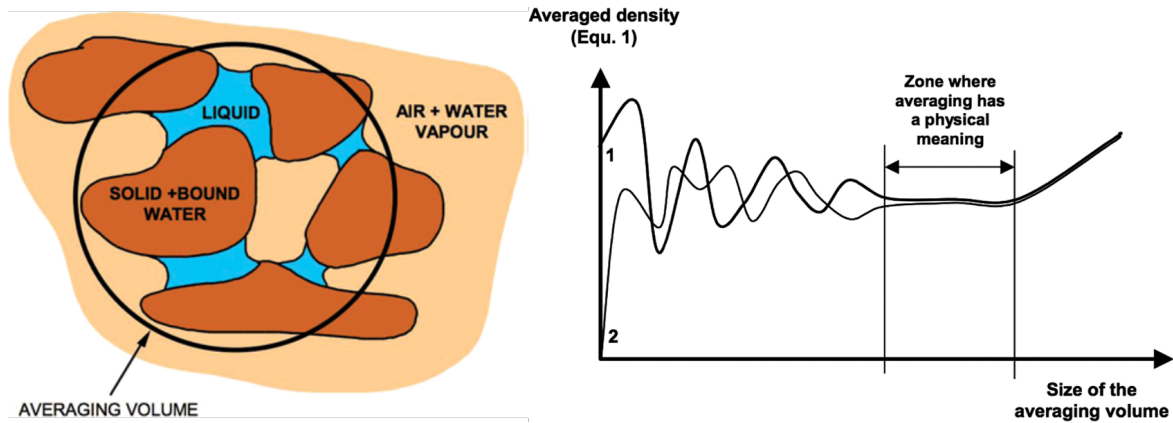


FIGURE 1.6 – gauche : a) Schéma représentatif d'un VER dans le cas du bois, droite : b) Schéma explicatif quant à la taille du VER, l'exemple correspond à la masse volumique avec 1 dans la phase solide et 2 dans un pore. Extraits de [Perré, 2015]

de Darcy en moyennant l'écoulement de Stokes à l'échelle microscopique [Whitaker, 1986]. Elle est décrite précisément dans différents ouvrages ([Gray, 1975], [Whitaker, 1977]) qui peuvent être consultés pour plus de précisions. Nous en expliciterons ici certains aspects dans le cadre des transferts de masse et de chaleur dans les milieux poreux. On notera par ailleurs l'existence d'autres démarches, telles que la méthode de l'homogénéisation asymptotiques [Sánchez-Palencia, 1980, Hubert et Palencia, 1992], permettant de justifier ces équations macroscopiques à partir de la description microscopique.

La prise de moyenne se base sur l'utilisation d'un volume élémentaire représentatif (VER) entourant le point considéré (voir Figure 1.6 a)). Ce volume V comprend les volumes des trois phases en présence : solide, liquide et gazeuse qui peuvent varier dans l'espace et dans le temps pour les deux dernières.

$$V = V_s + V_l + V_g \quad (1.2)$$

On effectuera sur ce volume des prises de moyennes qui seront associées à son centroïde. Il faut alors que le VER soit suffisamment grand pour pouvoir définir les quantités moyennées et éviter les effets de non-équilibre et suffisamment petit pour éviter des gradients macroscopiques. Cette double exigence est représentée sur la Figure 1.6 b).

Afin de définir la valeur macroscopique d'une grandeur Ψ , on utilisera deux moyennes différentes :

La moyenne dite globale :

$$\bar{\Psi} = \frac{1}{V} \int_V \Psi dV \quad (1.3)$$

La moyenne dite intrinsèque où on se limite à une phase i :

$$\bar{\Psi}^i = \frac{1}{V_i} \int_{V_i} \Psi dV \quad (1.4)$$

On a alors la relation :

$$\bar{\Psi} = \epsilon_i \bar{\Psi}^i \quad (1.5)$$

avec

$$\epsilon_i = \frac{V_i}{V} \quad (1.6)$$

qui représente la fraction volumique de la phase i .

Nous allons examiner ici l'exemple de la prise de moyenne sur l'équation de continuité de la phase liquide [Perre *et al.*, 2007] :

$$\frac{\partial \rho_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l u_l) = 0 \quad (1.7)$$

En utilisant la moyenne globale on obtient :

$$\frac{\partial \bar{\rho}_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho}_l u_l) = 0 \quad (1.8)$$

Afin d'expliciter chacun des deux termes nous allons utiliser les théorèmes de prise de moyenne [Whitaker, 1967] :

$$\overline{\nabla \cdot (\rho_l u_l)} = \nabla \cdot \overline{\rho_l u_l} + \frac{1}{V} \iint_{A_{lg}} \rho_l u_l \cdot n_{lg} dS + \frac{1}{V} \iint_{A_{ls}} \rho_l u_l \cdot n_{ls} dS \quad (1.9)$$

$$\frac{\partial \bar{\rho}_l}{\partial t} = \frac{\partial \bar{\rho}_l}{\partial t} - \frac{1}{V} \iint_{A_{lg}} \rho_l w \cdot n_{lg} dS - \frac{1}{V} \iint_{A_{ls}} \rho_l w \cdot n_{ls} dS \quad (1.10)$$

Dans ces expressions, les termes A_{lg} et A_{ls} représentent respectivement les surfaces d'interfaces liquide/gaz et liquide/solide dans le volume de prise de moyenne. Les termes n_{lg} et n_{ls} représentent les normales associées à ces surfaces. On remarque ainsi que puisque l'interface liquide/solide est considérée comme étant imperméable le troisième terme du second membre de l'équation 1.9 disparaît. De la même manière, les termes $w \cdot n_{lg}$ et $w \cdot n_{ls}$ représentent le déplacement des interfaces liquide/gaz et liquide/solide. La phase solide étant considérée comme indéformable, le troisième terme du second membre de l'équation 1.10 disparaît également.

On obtient finalement l'équation suivante :

$$\frac{\partial \bar{\rho}_l}{\partial t} + \nabla \cdot \bar{\rho}_l \bar{u}_l + \frac{1}{V} \iint_{A_{lg}} \rho_l (u_l - w) \cdot n_{lg} dS = 0 \quad (1.11)$$

Par ailleurs, on définit le taux d'évaporation massique $\langle \dot{m} \rangle$:

$$\langle \dot{m} \rangle = \frac{1}{V} \iint_{A_{lg}} \rho_l (u_l - w) \cdot n_{lg} dS \quad (1.12)$$

De plus :

$$\bar{\rho}_l = \epsilon_l \bar{\rho}_l^l \quad (1.13)$$

or, la moyenne intrinsèque de la masse volumique est égale à la masse volumique :

$$\bar{\rho}_l^l = \rho_l \quad (1.14)$$

d'où

$$\bar{\rho}_l = \epsilon_l \rho_l \quad (1.15)$$

On peut donc aboutir à la forme suivante de l'équation de continuité de la phase liquide moyennée :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\epsilon_l \rho_l) + \nabla \cdot \bar{\rho}_l \bar{u}_l + \langle \dot{m} \rangle = 0 \quad (1.16)$$

Considérant que ρ_l est constante on peut la réécrire :

$$\rho_l \frac{\partial}{\partial t} (\epsilon_l) + \rho_l \nabla \cdot \bar{u}_l + \langle \dot{m} \rangle = 0 \quad (1.17)$$

Les autres équations présentées en partie suivante sont obtenues sur le même principe mais font intervenir des techniques de résolution plus poussées qui peuvent être consultées dans [Whitaker, 1977].

Équations du modèle

Les équations obtenues par la méthode de prise de moyenne volumique sont adaptées aux spécificités des matériaux biosourcés (prise en compte du transport d'eau liée). Elles sont combinées et associées à des relations thermodynamiques. On obtient ainsi un jeu de trois équations pouvant décrire l'évolution temporelle de trois variables indépendantes (température, teneur en eau et pression totale de la phase gazeuse) [Perre et Degiovanni, 1990]. Nous présenterons les équations en trois catégories : Bilans massiques, Équations de transport, Bilan énergétiques et Relations thermodynamiques.

Bilans Massiques**Phase liquide**

$$\rho_l \frac{\partial \epsilon_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l \bar{u}_l) = -\langle \dot{m} \rangle \quad (1.18)$$

Phase gazeuse

La phase gazeuse est composée de deux constituants (air sec et vapeur d'eau) et nécessite donc deux équations non liées.

$$\frac{\partial \bar{\rho}_g}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho}_g^g \bar{u}_g) = \langle \dot{m} \rangle + \langle \dot{m}_b \rangle \quad (1.19)$$

$\bar{\rho}_g$ est la masse volumique moyenne de la phase gazeuse, \bar{u}_g est la vitesse moyenne du gaz et $\langle \dot{m}_b \rangle$ le taux de changement de phase de l'eau liée.

L'équation relative à la vapeur d'eau seule s'écrit :

$$\frac{\partial \bar{\rho}_v}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho}_v^g \bar{u}_v) = \langle \dot{m} \rangle + \langle \dot{m}_b \rangle \quad (1.20)$$

avec

$$\bar{\rho}_v^g \bar{u}_v = \bar{\rho}_v^g \bar{u}_g - \bar{\rho}_g^g \bar{\bar{D}}_{eff} \nabla \left(\frac{\bar{\rho}_v}{\bar{\rho}_g} \right) \quad (1.21)$$

$\bar{\rho}_v$ est la masse volumique moyenne de la vapeur d'eau, \bar{u}_v la vitesse de la vapeur d'eau et $\bar{\bar{D}}_{eff}$ la diffusivité effective à la vapeur d'eau qui est un tenseur.

Eau liée

$$\frac{\partial \bar{\rho}_b}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho}_b \bar{u}_b) = -\langle \dot{m}_b \rangle \quad (1.22)$$

$\bar{\rho}_b$ est la masse volumique de l'eau liée et $\bar{\rho}_b \bar{u}_b$ est le flux moyen d'eau liée.

Equations de transport**Loi de Darcy généralisée**

$$\bar{u}_g = -\frac{\bar{\bar{K}} \bar{\bar{k}}_g}{\mu_g} \nabla (\bar{p}_g^g) \quad (1.23)$$

$$\bar{u}_l = -\frac{\bar{\bar{K}} \bar{\bar{k}}_l}{\mu_l} \nabla (\bar{p}_l^l) \quad (1.24)$$

Ici interviennent en plus de la perméabilité intrinsèque \bar{K} les perméabilités relative \bar{k}_g et \bar{k}_l qui sont fonctions de la teneur en eau. Tous ces paramètres sont des tenseurs. On notera que dans le cas du bois massif, deux perméabilités intrinsèques différentes \bar{K}_g et \bar{K}_l sont utilisées. Cela est dû au phénomène d'aspiration des ponctuations aréolées.

La pression liquide \bar{p}_l^l et la pression gazeuse \bar{p}_g^g sont reliées à travers la pression capillaire p_c qui est une caractéristique du milieu poreux et est fonction de la température et de la teneur en eau.

$$\bar{p}_l^l = \bar{p}_g^g - p_c \quad (1.25)$$

Cette relation (1.25) exprime l'effet de la pression gazeuse sur la migration liquide.

Diffusion de l'eau liée

$$\overline{\rho_b u_b} = -\bar{\rho}_s \bar{D}_b \nabla \left(\frac{\rho_b}{\rho_s} \right) \quad (1.26)$$

ρ_s est la masse volumique de la matrice solide et \bar{D}_b la diffusivité de l'eau liée.

Bilan énergétique

Le bilan d'enthalpie nous permet de déterminer l'équation relative à l'évolution de la température.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\overline{\rho h}) + \nabla \cdot (\overline{\rho u h}) = \nabla \cdot (\bar{\lambda}_{eff} \nabla \bar{T}) \quad (1.27)$$

On exprime la chaleur différentielle de sorption h_s comme étant la différence entre l'enthalpie spécifique de l'eau liée h_b et celle de l'eau libre h_l . Elle est supposée indépendante de la température.

$$h_b(\bar{T}, \bar{\rho}_b) = h_l(\bar{T}) - h_s(\bar{\rho}_b) \quad (1.28)$$

On a donc :

$$\overline{\rho h} = \bar{\rho}_c h_c + \bar{\rho}_a h_a + \bar{\rho}_v h_v + (\bar{\rho}_l + \bar{\rho}_b) h_l - \int_0^{\rho_b} h_s d\rho \quad (1.29)$$

$$\overline{\rho u h} = \bar{\rho}_a^g \bar{u}_a h_a + \bar{\rho}_v^g \bar{u}_v h_v + (\bar{\rho}_l \bar{u}_l + \overline{\rho_b u_b}) h_l - \overline{\rho_b u_b} h_s(\bar{\rho}_b) \quad (1.30)$$

On notera que u_a et u_v sont différentes en raison de la diffusion binaire. On développe alors l'équation (1.27) en supposant toutes les chaleurs spécifiques constantes, d'où

$$\begin{aligned} \frac{\bar{\rho} C_p}{\bar{\rho} C_p} \frac{\partial \bar{T}}{\partial t} + \Delta h_v (\langle \dot{m} \rangle + \langle \dot{m}_b \rangle) + h_s \langle \dot{m}_b \rangle - \bar{\rho}_b \bar{u}_b \nabla (h_s) \\ + \left[(\rho_l \bar{u}_l + \bar{\rho}_b \bar{u}_b) C_{pl} + \sum_{i=a,v} (\bar{\rho}_i^g \bar{u}_i C_{pi}) \right] \cdot \nabla \bar{T} = \nabla \cdot (\bar{\lambda}_{eff} \nabla \bar{T}) \quad (1.31) \end{aligned}$$

Relations thermodynamiques

En supposant l'équilibre thermodynamique local, la pression partielle de vapeur est égale à sa valeur d'équilibre

$$\bar{p}_v^g = p_v(\bar{T}, \rho_b)$$

La phase gazeuse est assimilée à un mélange de gaz parfaits :

$$\bar{p}_i = \frac{\bar{\rho}_i R \bar{T}}{M_i} \quad \text{avec} \quad i = a, v \quad (1.32)$$

$$\bar{p}_g = \bar{p}_a + \bar{p}_v \quad \text{et} \quad \bar{\rho}_g = \bar{\rho}_a + \bar{\rho}_v \quad (1.33)$$

Système d'équations à résoudre

Afin d'être traité numériquement, le système doit être transformé. Ainsi, on obtiendra trois équations principales permettant d'accéder à l'évolution temporelle de chacune des trois variables d'état (température, teneur en eau, et pression totale de la phase gazeuse).

L'équation relative à la température est issue de l'équation (1.31) dans laquelle $\langle \dot{m} \rangle$ et $\langle \dot{m}_b \rangle$ sont calculés à partir des équations (1.19) et (1.22) (on néglige le terme d'accumulation $\frac{\partial \bar{\rho}_g}{\partial t}$ dans (1.19)).

On obtient le bilan massique global sur l'eau en sommant les équations (1.18) (1.20) et (1.22) :

$$\begin{aligned} \bar{\rho}_c \frac{\partial X}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\bar{\rho}_l \frac{\bar{K}_l \bar{k}_l}{\mu_l} \nabla (\bar{p}_g^g - p_c) + \bar{\rho}_v^g \frac{\bar{K}_g \bar{k}_g}{\mu_g} \nabla (\bar{p}_g^g) \right. \\ \left. + \bar{\rho}_g^g \bar{D}_{eff} \nabla \left(\frac{\bar{\rho}_v}{\bar{\rho}_g} \right) + \bar{\rho}_s \bar{D}_b \nabla \left(\frac{\bar{\rho}_b}{\bar{\rho}_c} \right) \right] \quad (1.34) \end{aligned}$$

X est la teneur en eau du milieu définie par

$$X = \frac{(\bar{\rho}_l + \bar{\rho}_v + \bar{\rho}_b)}{\bar{\rho}_c} \quad (1.35)$$

La pression totale de la phase gazeuse est la somme des pressions partielles de vapeur d'eau et d'air, développées conformément aux relations des gaz parfaits.

$$\frac{\partial \bar{p}_g^g}{\partial t} = \frac{\partial \bar{p}_v^g}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{\partial \bar{p}_v^g}{\partial X} \frac{\partial X}{\partial t} - \frac{RT}{M_a} \frac{1}{\epsilon_g} \left(\nabla(\bar{\rho}_a^g \cdot \bar{u}_a) + \bar{\rho}_a^g \frac{\partial \epsilon_g}{\partial t} \right) + \frac{\bar{p}_a^g}{T} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1.36)$$

La méthode numérique utilisée pour résoudre ce système d'équation se base sur les volumes finis [Baliga et Patankar, 1983]. Si cet aspect numérique ne sera pas développé, notons tout de même que cette méthode est particulièrement adaptée à la résolution des lois de conservation.

1.3 Une limite des modèles traitant le couplage chaleur-masse : le non-équilibre local

Dans cette partie, nous commencerons par évoquer les origines possibles des différences entre simulations hygrothermiques et observations expérimentales. Nous étudierons ensuite plus particulièrement le phénomène de non-équilibre thermodynamique local qui est au centre de ce travail de thèse. Après avoir observé ses conséquences, nous nous pencherons sur différentes modélisations existantes. Nous aborderons également la problématique de la sorption retardée, due à des phénomènes de relaxation moléculaire.

1.3.1 Des limites des modèles de transferts couplés

Comme montré dans l'article de synthèse [Busser *et al.*, 2018], les écarts entre simulations du comportement énergétique d'un bâtiment et résultats expérimentaux sont d'autant plus importants que les matériaux utilisés sont hygroscopiques. Ces différences peuvent avoir plusieurs origines. Il a par exemple été montré que les paramètres caractérisant la physique des transferts dans ces matériaux ont une influence déterminante [Spitz *et al.*, 2012, Wang et Ge, 2016]. Or, la manière de caractériser ces paramètres peut poser question. Par exemple comme nous l'avons vu précédemment, l'influence de la perméabilité du matériau dans les résultats obtenus avec la méthode de la coupelle est questionnée dans [Duforestel, 2015]. L'utilisation dans les modèles de l'unique courbe de sorption aura aussi une influence non négligeable. Ainsi, il est montré dans [Kwiatkowski *et al.*, 2009] que l'utilisation d'un modèle d'hysteresis ou même d'une courbe moyenne entre sorption et désorption améliore considérablement le résultat des simulations. Par ailleurs, la plupart des modèles ne prennent pas en compte la dépendance des courbes de sorption à la température et se contentent d'utiliser un modèle isotherme. Il est cependant montré [Colinart *et al.*, 2017, Colinart et Glouanec, 2017] que sa prise en compte a un impact non négligeable sur les simulations.

1.3.2 Non-équilibre thermodynamique local

Plusieurs études cherchant à caractériser le comportement dynamique de matériaux biosourcés mettent en avant les mêmes conclusions : les paramètres caractéristiques du matériau mesurés en régime permanent ne permettent pas de restituer son comportement en régime transitoire. C'est par exemple le cas dans [Künzel *et al.*, 2005] où dans [Perré *et al.*, 2015]. Dans cette dernière étude, le coefficient de diffusion à la vapeur est identifié par méthode inverse en utilisant l'évolution de l'humidité relative en face arrière d'un échantillon de LDF après avoir perturbé l'humidité ambiante sur sa face avant. La valeur identifiée pour le LDF est très différente de celle habituellement mesurée en régime permanent. Elle a même une valeur non-physique (supérieure à celle de l'air). D'importants écarts sont également observés dans [Lelievre *et al.*, 2014] pour du béton de chanvre. Dans cette étude un échantillon de béton de chanvre est soumis à une variation d'humidité relative en face avant alors que l'on mesure sa masse ainsi que l'humidité relative à différentes épaisseurs. On note alors l'apparition d'un déphasage entre les deux grandeurs, que le modèle utilisé n'arrive pas à simuler. Enfin, on citera l'étude de Rémond et Almeida [Rémond et Almeida, 2011] concernant également du LDF. Dans celle-ci, il est montré que le coefficient de diffusion à la vapeur de ces panneaux est différent en régime transitoire et permanent. Par ailleurs, comme montré dans [Crank, 1975], dans le cas d'une grandeur suivant une loi diffusive classique en 1D, sa représentation en fonction du ratio du temps au carré sur la longueur de diffusion devrait être identique quelle que soit cette longueur. La figure 1.7, extraite de [Rémond et Almeida, 2011], représente l'évolution de la teneur en eau d'échantillons de LDF de différentes épaisseurs soumis, à une perturbation de l'humidité relative ambiante. Or, on constate bien que pour les plus faibles épaisseurs les courbes ne se superposent pas, ce qui montre que le coefficient de diffusion dépend de l'épaisseur. Le matériau n'obéit donc pas au lois de diffusion classique, on parle alors de comportement non-Fickien. Tous ces phénomènes ont une origine commune, l'absence d'équilibre thermodynamique à l'échelle local.

En effet, prenons l'exemple d'un matériau fibreux comme le LDF. Celui-ci est composé d'une phase gazeuse très diffusive ainsi que d'une phase solide, les fibres, peu diffusive. On dit alors qu'on est dans une configuration double-échelle. Dans cette configuration, le temps de diffusion macroscopique dans la phase gazeuse est du même ordre de grandeur, voir inférieur au temps de diffusion microscopique dans les fibres. Les deux phases ne sont donc pas à l'équilibre localement et le modèle classique n'est plus valable. Sachant qu'en 1D, le temps de diffusion macroscopique τ_{macro} est proportionnel au carré de la longueur de diffusion, on comprendra que le phénomène est particulièrement important pour des échantillons de faibles épaisseurs.

1.3.3 Modélisation des configurations double échelle

La modélisation de ces configurations double échelle trouve son origine dans l'étude des écoulements dans les réservoirs fracturés et plus largement les sciences liées à

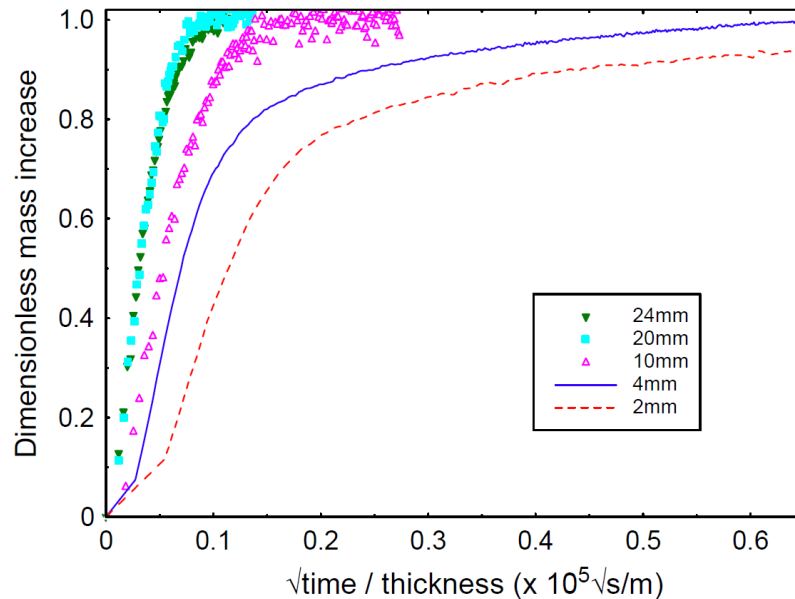


FIGURE 1.7 – Évolution de la masse adimensionnée en fonction de la racine carré du temps divisée par l'épaisseur pour des échantillon de LDF de différentes épaisseurs lorsque soumis à une perturbation de l'humidité relative ambiante, extrait de [Rémond et Almeida, 2011]

l'extraction du pétrole. Les réservoirs fracturés sont des milieux poreux non-homogènes comportant deux échelles de porosité. La première est attribuée aux blocs poreux qui forment la matrice solide. La seconde au système de fissures qui sépare ces blocs. Les caractéristiques principales d'un tel milieu sont que les échanges de fluide entre blocs sont faibles comparé aux échanges avec le système de fissures, que la perméabilité des fissures est bien plus importante que celle des blocs et que les fissures occupent un volume beaucoup plus petit que la matrice poreuse. Excepté ce dernier point, l'analogie avec un milieu fibreux tel que le LDF se justifie donc.

Dès 1960, Barenblatt [Barenblatt *et al.*, 1960] remarquait que les modèles utilisés à cette époque pour l'infiltration dans de tels milieux ne réussissaient pas à reproduire fidèlement la réalité observée. Ces modèles se basaient sur la mécanique des milieux continus et utilisaient des grandeurs moyennes (perméabilité, porosité etc...) pour caractériser l'ensemble du milieu. L'idée de Barenblatt fut d'introduire deux pressions liquides en chaque point de l'espace, une pour la matrice solide et une pour le réseau de fissures. La migration de liquide entre les deux milieux est alors prise en compte par une fonction de transfert ayant pour variable la différence de pression entre les deux milieux.

Ce modèle peut être utilisé avec d'autres grandeurs traduisant une densité. On le nomme modèle à flux parallèles car il traite de façon symétrique l'écoulement dans les deux milieux. Il prend la forme du système parabolique suivant :

$$\frac{\partial}{\partial t}(au_1) - \nabla \cdot (A\nabla u_1) + \alpha(u_1 - u_2) = f_1 \quad (1.37)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(bu_2) - \nabla \cdot (B\nabla u_2) + \alpha(u_2 - u_1) = 0 \quad (1.38)$$

Dans ce système, u_1 représente la densité dans le premier milieu (le réseau de fissures dans le cas cité précédemment) et u_2 la densité dans le second milieu (la matrice solide pour ce même cas). a représente un coefficient lié au stockage et A un coefficient lié au transport dans le premier milieu (dans le cas des réservoirs fracturés il s'agit respectivement de la porosité et de la perméabilité) et b et B les grandeurs équivalentes dans le second. On est donc en présence de deux équations de diffusion dont on comprend qu'elles représentent l'écoulement dans les milieux correspondants. Dans chacune de ces équations, le troisième terme quantifie l'échange entre les deux milieux, α représente donc un coefficient d'échange (dans le cas des réservoirs fracturés il peut être vu comme la densité de fissuration).

Ce modèle fondateur a par la suite été largement utilisé dans le domaine de l'industrie pétrolière [Warren et Root, 1963] puis dans d'autres disciplines telles que l'étude des eaux souterraines [Moench, 1984], les transports de polluants [Maloszewski et Zuber, 1993], le stockage de déchets nucléaires en sous-sol [Lever, 1985] ou l'utilisation de l'énergie géothermique [Kolditz, 1995].

Concernant l'étude des matériaux biosourcés, on retrouve l'utilisation de ce type de modèles pour simuler l'infiltration d'eau dans la direction longitudinale du bois [Krabbenhoft et Damkilde, 2004b]. En effet, de par l'orientation des vaisseaux, les transferts de masse dans cette direction sont très importants. Dans ce cas, ce sont les vaisseaux qui jouent un rôle analogue aux fissures pour les réservoirs. On retrouve également ce type d'approche pour le papier dans [Lescanne, 1992].

1.3.4 Modèles à microstructures réparties et effet mémoire

En nous basant sur les travaux de Showalter [Showalter et Hornung, 1990, Showalter, 1991] nous abordons ici les modèles à microstructures réparties. Ces modèles découlent historiquement du modèle à flux parallèles décrit en section précédente. Ils ont fortement inspiré la formulation macroscopique permettant de modéliser le non-équilibre local utilisée dans ce travail de thèse.

Dans le cas d'un réservoir fissuré (comme dans celui d'un milieu fibreux), il est possible de considérer que l'essentiel du transfert se fait par la phase conductrice et qu'il n'y a pas de flux entre les blocs (l'analogie tient avec les fibres). De ce fait, il est possible d'éliminer B dans l'équation 1.38. On obtient ainsi le système suivant nommé modèle du premier ordre cinétique :

$$\frac{\partial}{\partial t}(au_1) - \nabla \cdot (A\nabla u_1) + \alpha(u_1 - u_2) = f \quad (1.39)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(bu_2) + \alpha(u_2 - u_1) = 0 \quad (1.40)$$

En utilisant la théorie de l'homogénéisation, Showalter [Showalter et Hornung, 1990] retrouve un système d'équations équivalent constituant le modèle à microstructures réparties. Ce modèle doit permettre de rendre compte de la géométrie des cellules composant le problème ainsi que de celle des interfaces entre les fissures et les blocs de la matrice solide. Il est explicité ci-dessous.

On définit un domaine Ω et une cellule élémentaire Y où est définie une variable locale y . On définit également une variable à l'échelle macroscopique x dans le domaine Ω .

Ainsi, pour la problématique des réservoirs fracturés, l'écoulement du flux à travers le système de fissures correspond à l'échelle macroscopique et est décrit par l'équation suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}(a(x)U(t,x)) - \nabla \cdot (A(x)\nabla U(t,x)) + Q(t,x) = F(t,x), \quad x \in \Omega \quad (1.41)$$

Dans cette équation, le terme $Q(t,x)$ représente l'échange avec la cellule Y_x (soit la cellule Y de coordonnée macroscopique x). Dans cette cellule Y_x l'écoulement du fluide est représenté par l'équation suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}(b(x,y)u(t,x,y)) - \nabla_y \cdot (B(x,y)\nabla_y u(t,x,y)) = 0, \quad y \in Y_x \quad (1.42)$$

Ici l'opérateur indicé avec y signifie que l'on se place à l'échelle de la variable locale y alors que celui exprimé sans indice signifie que l'on se place à l'échelle de la variable globale x . Par ailleurs, de par la petite taille d'une cellule, on supposera que la densité à ses limites Γ_x est bien approximée par $U(t,x)$.

Le terme d'échange s'exprime alors :

$$Q(t,x) = \frac{1}{|Y_x|} \int_{\Gamma_x} B(x,y)\nabla_y u \cdot \vec{n} d\Gamma \quad (1.43)$$

où \vec{n} représente la normale sortante à la cellule Y_x et $|Y_x|$ la mesure de Lebesgue de Y_x .

Ce modèle étendu au cas de plusieurs variables couplées (transferts couplés de chaleur et de masse) a déjà été utilisé pour modéliser des problèmes de non-équilibre local dans des milieux fibreux [Almeida *et al.*, 2010] ou le séchage de piles de bois [Perré

et Rémond, 2006]. Cependant l'utilisation du modèle complet requérait un temps de calcul trop long pour les travaux envisagés dans ce travail (par exemple l'identification de paramètres par méthode inverse) ou pour être adapté à des codes de thermique du bâtiment.

Toutefois, comme montré dans [Showalter et Hornung, 1990, Showalter, 1991, Showalter, 1997], les équations 1.41 à 1.43 peuvent être réécrites sous la forme d'une seule équation différentielle. Pour cela, on résout le problème de diffusion sur une cellule Y_x :

$$\frac{\partial}{\partial t}(b(x,y)u(t,x,y)) - \nabla_y \cdot (B(x,y)\nabla_y u(t,x,y)) = 0, \quad \text{sur } Y_x \quad (1.44)$$

$$u(t,x,y) = U(t,x) \quad \text{sur } \Gamma_x \quad (1.45)$$

Sa solution est représentée par la fonction de Green :

$$\int_{\Gamma_x} \int_0^t g(y,s,t - \tau) ds u(\tau) d\tau \quad (1.46)$$

En appliquant le théorème de Gauss sur l'équation 1.42, on peut exprimer le flux $Q(t,x)$. En injectant dans 1.41 on obtient une seule équation traduisant le comportement macroscopique du milieu :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ a(x)U(t,x) + \int_0^t \varphi(t - \tau, x)U(\tau, x) d\tau \right\} - \nabla \cdot (A(x)\nabla U) = F(x,t) \quad (1.47)$$

avec

$$\varphi = \int_{\Omega} \int_0^t g(y,s,t) ds dy \quad (1.48)$$

Dans l'équation 1.47, le terme convolutif représente un effet de stockage avec mémoire et φ sera dénommée par la suite fonction mémoire. Cette fonction mémoire est obtenue en résolvant un problème de diffusion dans une cellule élémentaire [Peszynska, 1992]. La forme de la fonction φ dépend de la géométrie des cellules, ses paramètres sont ceux du problème de diffusion élémentaire (porosité, perméabilité, diffusivité ...) et des paramètres géométriques.

Par ailleurs, on ajoutera qu'il est montré dans [Showalter et Hornung, 1990] que le choix d'une fonction φ composé d'une seule exponentielle dans l'expression 1.47 permet de revenir au modèle cinétique du premier ordre (modèle à flux parallèles ne prenant pas en compte la diffusion dans les blocs). On peut donc le voir comme un cas particulier de modèle à microstructures réparties.

1.3.5 Sorption retardée et relaxation moléculaire

Comme montré dans la partie 1.3.2, l'origine du non-équilibre provient d'un temps de diffusion microscopique trop long par rapport au temps de diffusion macroscopique. Or, plusieurs études ont montré que ce temps de diffusion microscopique était dépendant de l'humidité relative et ne semblait pas répondre à un phénomène de diffusion classique. Les premiers travaux conséquents concernant ce phénomène dans le bois proviennent de Christensen [Christensen et Kelsey, 1959]. Celle-ci a soumis de très fins échantillons de bois à des sauts de pression de vapeur pure et a mesuré l'évolution de leur teneur en eau. Utiliser de la vapeur pure permettait d'éliminer la résistance externe à la diffusion. Utiliser des échantillons très fins rendait négligeable l'influence de la diffusion de vapeur sur le résultat. Cependant, il a été constaté que les échantillons présentaient quand même un comportement non-Fickien. Ce comportement devait donc provenir des parois cellulaires du matériau. Par ailleurs, il a été constaté que le taux de sorption était plus faible à haute humidité relative, le comportement non-Fickien y étant exacerbé. Le même type de résultats furent trouvés par Kelly [Kelly et Hart, 1970], Wadso [Wadsö, 1993] ou Hakansson [Håkansson, 1998].

L'explication la plus couramment avancée pour expliquer ce phénomène est que le taux d'adsorption est limité par la lenteur du réarrangement moléculaire [Christensen, 1967]. Ce phénomène avait déjà été constaté pour des phénomènes de diffusion dans des polymères (non-végétaux). Ainsi, Crank [Crank, 1953] suggère que lors du phénomène de diffusion, une partie du réarrangement se fait instantanément et une partie de façon lente comparée à la vitesse de diffusion. Cette modification de l'arrangement moléculaire affecte le coefficient de diffusion microscopique qui va tendre vers une valeur d'équilibre. Ainsi, le coefficient de diffusion microscopique ne dépend pas seulement de la concentration mais également de "l'histoire" du matériau.

Concernant les tentatives de modélisation de ce phénomène à l'échelle macroscopique, on retrouvera notamment des modèles double échelle utilisant comme coefficient d'échange entre les phases solides et gazeuse une fonction représentative du taux de sorption [Frandsen *et al.*, 2007, Krabbenhoft et Damkilde, 2004a]. Hill *et al.* [Hill *et al.*, 2012] proposent eux de modéliser l'évolution de la teneur en eau comme une somme d'exponentielles décroissantes. Dans le même ordre d'idée, Olek *et al.* proposent d'ajouter un terme exponentiel dans la condition aux limites convective [Olek *et al.*, 2011].

1.4 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que les normes concernant la consommation d'énergie des bâtiments devenaient de plus en plus exigeantes. Cela aboutit donc à des constructions très performantes en terme d'isolation. Par ailleurs, le développement de modèles capables de simuler les transferts hygrothermiques permet de comprendre l'important impact de ceux-ci sur le comportement énergétique des constructions.

En parallèle, la volonté de limiter l'impact environnemental des constructions plaide pour une augmentation de l'usage des matériaux biosourcés. Cependant, malgré leur bonnes performances énergétiques, il a été montré que l'usage de ces matériaux induisait des difficultés pour simuler les transferts hygrothermiques.

L'une des causes de ces difficultés pour les matériaux fibreux destinés à l'isolation est l'absence d'équilibre à l'échelle local. En effet, pour la diffusion massique le temps caractéristique macroscopique n'est pas assez important devant le temps caractéristique microscopique. Ce phénomène induit d'importantes erreurs en régime transitoire.

Dans ce travail de thèse, nous proposerons de valider expérimentalement une nouvelle formulation capable d'appréhender à l'échelle macroscopique ces phénomènes prenant naissance à l'échelle microscopique. Cette formulation doit pouvoir être implémentée dans des codes de thermique du bâtiment et donc prendre en compte le couplage chaleur masse et ne pas nécessiter de temps de calculs trop longs.

Chapitre 2

Synthèse en français

Contexte

En France, le secteur du bâtiment est le plus gros consommateur d'énergie avec plus de 40 % de l'énergie finale. C'est aussi un gros pollueur puisqu'il générerait plus de 20 % des émissions de gaz à effet de serre. Cette problématique est prise en compte par les autorités depuis le premier choc pétrolier au travers de réglementations thermiques qui poussent à la conception de bâtiments sobres énergétiquement. Les dernières réglementations et celles à venir imposent désormais des limitations très ambitieuses quant à la consommation d'énergie. Les leviers permettant de l'abaisser sont nombreux mais le chauffage étant le principal poste de dépense, une bonne isolation reste indispensable.

Une des conséquences de ces bâtiments très performants énergétiquement est que la phase de construction prend une part de plus en plus importante quant à leur impact environnemental. Ainsi, l'utilisation de matériaux plus respectueux de l'environnement est-elle recommandée au travers de nouvelles directives. On peut donc s'attendre à une forte croissance dans l'utilisation de matériaux biosourcés. Il s'agit de matériaux issus de la biomasse, utilisés pour différentes applications dans le domaine de la construction. On retrouvera ainsi du bois massif en structure ou des matériaux fibreux (laine de bois, de chanvre, de mouton, paille...) dans le domaine de l'isolation. La plupart de ces matériaux ayant une origine végétale, ils possèdent de bonnes performances environnementales car agissent comme des "puits de carbone". En effet, durant leur croissance les végétaux captent du CO₂ par photosynthèse et ne le relâche qu'en fin de vie. Par ailleurs, l'utilisation de ces matériaux pourrait permettre de participer aux économies locales, ceux-ci étant adaptés à des circuits de distribution courts.

Ces matériaux ont également la particularité d'être très hygroscopiques, ce qui pose un certain nombre de questions. Si l'étude des transferts de masse dans le domaine de la construction n'est pas nouvelle (pour des problèmes de condensation dans les parois notamment), celle de leur impact sur le comportement énergétique des bâtiments est relativement récente. Différentes études ont ainsi souligné que celui-ci était non négligeable. Ainsi, l'utilisation de matériaux très hygroscopiques comme les biosourcés peut se révéler très intéressante. En effet, ceux-ci peuvent agir comme des régulateurs

d'humidité et ainsi participer au confort hygrothermique des habitants tout en limitant la facture liée aux dépenses de ventilation ou de climatisation. Cependant, des études soulignent également que l'utilisation de tels matériaux augmente la complexité des simulations du comportement énergétique des bâtiments. Ainsi, d'importantes différences ont été notées entre simulations dynamiques et résultats expérimentaux. Ces différences pourraient freiner le développement de ces matériaux qui semblent pourtant constituer un secteur d'avenir. L'origine de celles-ci n'est pas encore clairement identifiée. De nombreuses pistes telles que la non prise en compte de l'hysteresis de sorption ou des biais dans la mesure des paramètres matériaux sont investiguées.

Transferts dans les matériaux isolants biosourcés

Les matériaux fibreux pour l'isolation tels que les panneaux de fibres de faible densité (ou LDF pour low density fiberboard) cumulent les difficultés de simulation de par leurs caractéristiques très contrastées. Ils sont à la fois très diffusifs à la vapeur d'eau, très hygroscopiques et présentent une faible conductivité thermique. Cette difficulté peut être illustrée par les résultats d'une nouvelle méthode d'identification du coefficient de diffusion massique réduit f en régime transitoire. Ce paramètre correspond au ratio du coefficient de diffusion massique du matériau sur celui de l'air, soit l'inverse du coefficient μ utilisé dans le domaine de la construction. L'originalité de cette méthode décrite au chapitre 4 est d'utiliser comme grandeur pour l'identification, l'évolution de l'humidité relative sur la face arrière d'un échantillon après avoir soumis sa face avant à une perturbation de l'humidité relative ambiante.

Pour ce faire, on place à l'arrière d'un échantillon cylindrique du matériau à tester (de diamètre 72 mm), un disque en PVC de même diamètre équipé d'un capteur d'humidité relative/température. On s'assure que le transfert a lieu en une dimension grâce à un dispositif assurant l'étanchéité latérale de l'ensemble échantillon/disque. On place ensuite ce dispositif dans une enceinte climatique contrôlée en humidité relative et température. Un câble reliant le disque au poste de travail permet d'enregistrer l'évolution de l'humidité en face arrière alors que des capteurs placés dans l'enceinte enregistrent les conditions sur la face avant. Une fois que l'échantillon a atteint l'équilibre, on modifie l'humidité relative dans l'enceinte ce qui va créer un flux diffusif depuis la face avant vers la face arrière. Les données recueillies sont utilisées comme entrées d'un code permettant de simuler le couplage chaleur masse dans des matériaux poreux (*Transpore*, développé par P. Perré). En l'alimentant avec divers paramètres matériaux, une estimation du paramètre à identifier et les conditions en face avant, le code va pouvoir prédire l'évolution de l'humidité relative en face arrière. La différence entre cette humidité prédite et celle trouvée expérimentalement est quantifiée. Un algorithme d'optimisation ajuste les paramètres libres afin de réduire la différence jusqu'à la satisfaction d'un critère de convergence.

En amont de ce travail de thèse, cette méthode développée dans notre laboratoire avait déjà été utilisée pour caractériser divers matériaux biosourcés employés dans le

domaine de la construction, dont du LDF. Or, la valeur de f identifiée pour ce matériau était supérieure à 1, ce qui n'a pas de sens physique puisque cela signifierait que le matériau est plus diffusif que l'air. Deux hypothèses quant à l'origine de cette valeur ont été investiguées :

- un problème de méthodologie lié au couplage chaleur masse, exacerbé dans ce type de matériaux,
- la non prise en compte du phénomène de non-équilibre local par le modèle.

Phénomène de non-équilibre local

Concernant le non-équilibre local, ce phénomène a pour origine la morphologie du matériau qui est constitué de deux phases avec des propriétés très contrastées : une phase gazeuse très connectée et très diffusible à la vapeur d'eau et une phase solide mal connectée et qui diffuse lentement. Par conséquent, en régime transitoire deux constantes de temps interfèrent :

- une constante de temps macroscopique liée à la diffusion dans la phase gazeuse, à l'échelle du matériau,
- une constante de temps microscopique liée à la diffusion dans la phase solide, à l'échelle des inclusion.

Si la seconde constante de temps est supérieure ou du même ordre de grandeur que la première, les phases de l'eau ne sont pas à l'équilibre localement et les modèles classiques échouent à représenter la physique du transfert.

Ce phénomène, avait déjà été identifié pour du LDF, avec notamment comme conséquence une dépendance du coefficient de diffusion avec l'épaisseur du matériau. Il devrait également créer l'apparition d'un déphasage entre le front d'humidité relative et celui de teneur en eau. En effet, classiquement ces deux grandeurs sont à l'équilibre ce qui est représenté par l'isotherme de sorption. Dans cette situation, ce n'est plus le cas car la diffusion dans la fibre induit un retard. En régime transitoire, l'humidité relative est donc "en avance" sur la teneur en eau.

Par ailleurs, il a été constaté dans différentes études que cette constante de temps microscopique était dépendante de l'humidité relative ambiante. En effet, à haute humidité relative la diffusion dans la fibre devient plus lente, accentuant l'effet du non-équilibre local. Ce phénomène est documenté sous différentes appellations telles que "diffusion non-fickienne" ou "sorption retardée". Cette augmentation de la constante de temps microscopique montre que les mécanismes de transfert à cette échelle n'obéissent pas aux lois de diffusions classiques pour l'ensemble de la matière. On attribue généralement ces observations à des phénomènes de relaxation moléculaire à l'échelle des parois cellulaires.

Objectifs

Ce travail de thèse a pour but de réussir à prédire correctement les transferts hygrothermiques à l'échelle macroscopique dans ces matériaux hautement diffusifs et hygroscopiques. Il était pour cela nécessaire de valider expérimentalement une nouvelle formulation, utilisable dans des codes de thermique du bâtiment et capable d'appréhender les phénomènes mis en jeu.

Un premier objectif était d'analyser rigoureusement les phénomènes de couplage chaleur masse dans ces matériaux et la contribution des différents paramètres macroscopiques sur leur comportement hygrothermique.

Un second objectif était de mettre en évidence le non-équilibre local en développant un dispositif expérimental permettant de soumettre un échantillon à une variation d'humidité relative sur sa face avant puis de mesurer simultanément l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière et de sa teneur en eau moyenne. En situation de non équilibre, il devrait exister un déphasage entre ces deux grandeurs que la formulation classique de transferts couplés ne peut prédire.

Afin de prédire correctement ces grandeurs, un troisième objectif fut de développer une nouvelle formulation macroscopique capable de modéliser les phénomènes de non équilibre local. Cette formulation a pour finalité de pouvoir être implémentée dans des codes de thermique du bâtiment. Elle doit donc pouvoir appréhender le couplage chaleur masse et ne pas nécessiter de temps de calcul trop longs.

Une fois cette formulation implémentée, un dernier objectif était de l'alimenter avec des paramètres caractéristiques des phénomènes diffusifs à l'échelle microscopique. Pour ce faire, ces paramètres devaient être identifiés dans des conditions où les phénomènes microscopiques étaient prédominants sur les phénomènes macroscopiques.

Afin de démontrer l'aspect prédictif de la nouvelle formulation et la bonne prise en compte du couplage, les données obtenues avec le nouveau dispositif expérimental devaient pouvoir être utilisées dans la procédure d'identification. Le code étant alimenté par les paramètres microscopiques ainsi que des paramètres macroscopiques dont la pertinence aurait été précédemment analysée, l'algorithme devrait pouvoir identifier un coefficient f capable de prédire à la fois l'évolution de l'humidité relative en face arrière, ainsi que la teneur en eau moyenne. Cette démarche est illustrée sur la figure 2.1.

Analyse du couplage chaleur masse

Afin de pouvoir analyser les phénomènes de couplage chaleur masse, une expérience originale a été mise en place. Celle-ci, ainsi que les autres aspects de cette partie sont détaillés au chapitre 3.

Cette expérience est relativement similaire à celle conduite pour l'identification du coefficient f décrite précédemment. Cependant, cette fois l'évolution de la température est également enregistrée et la configuration de l'échantillon est modifiée. En effet, pour éviter une perturbation thermique liée au contact du PVC en face arrière, le capteur est désormais placé entre deux plaques de LDF (de masse volumique 160 kg.m^{-3}),

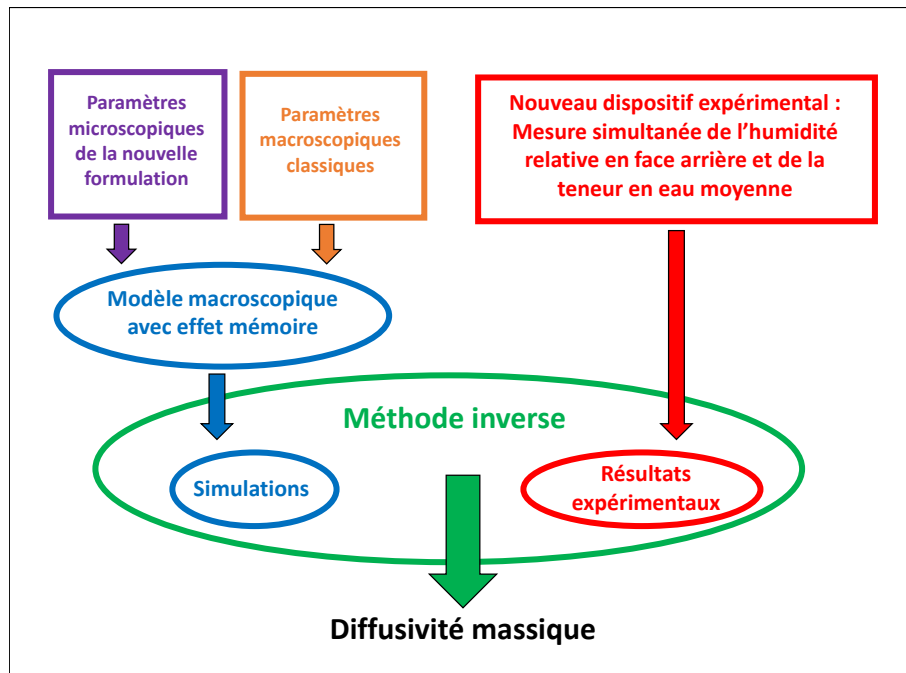


FIGURE 2.1 – Schéma de principe de la prédiction du comportement macroscopique

, assurant ainsi une configuration parfaitement symétrique. Les dimensions de ces plaques ont été choisies assez larges pour éviter toute perturbation par effet de bord ($30 \times 30 \text{ cm}$). Les faces latérales ont par ailleurs été isolées avec de l'aluminium et de la résine pour éviter toute fuite de vapeur d'eau. Après stabilisation des conditions en face arrière (soit au centre des deux plaques), un saut d'humidité relative de 20 à 40 % à $35 \text{ }^\circ\text{C}$ a été imposé. Le choix de ces conditions visait à limiter l'influence du non équilibre local dont nous avons vu qu'il était plus important à haute humidité relative. L'analyse des résultats expérimentaux montre une élévation de la température de plusieurs degrés en face arrière. On observe également que la dynamique du transfert de vapeur est ralentie comparée à la précédente configuration.

L'origine de ces observations provient d'un couplage chaleur masse exacerbé pour ce type de matériau.. En effet, durant l'essai la face avant de l'échantillon est brutalement soumise à une augmentation de l'humidité relative. L'eau va donc se condenser à sa surface. Cette condensation va chauffer la surface via la chaleur latente de vaporisation. Comme la température augmente, la pression partielle de vapeur qui est le produit de l'humidité relative et de la pression vapeur saturante augmente également car cette dernière dépend de la température. L'augmentation de la pression de vapeur à la surface va dans un premier temps diminuer le gradient avec l'extérieur et donc la force motrice, ce qui ralentit le transfert. Dans un second temps, la chaleur va se propager à l'arrière de l'échantillon, ce qui a pour effet d'augmenter la pression partielle de vapeur. Un flux se crée vers la face arrière. Ce flux va générer de la condensation qui à son tour génère de la chaleur. Le processus s'auto-entretient, créant une vague de

chaleur qui va atteindre la face arrière, facilité par une phase gazeuse importante et interconnectée. Un gradient de température s'établit alors entre la face arrière et la face avant où la chaleur s'évacue par convection.

L'ampleur du phénomène est due aux caractéristiques contrastées du LDF :

- sa forte hygroscopicité entraîne une importante condensation et donc un fort apport de chaleur,
- sa forte diffusivité crée un flux massique important vers l'arrière de l'échantillon,
- sa faible conductivité thermique ralentit l'évacuation de la chaleur.

Des simulations numériques utilisant le code *Transpore* permettent de souligner l'influence du couplage. Ces simulations sont visibles en figure 2.2 pour l'évolution de la température (haut) et de l'humidité relative (bas) en face arrière de l'échantillon. Pour ces différentes simulations, la valeur utilisée pour la diffusivité massique réduite est celle identifiée par méthode inverse. Elle est de 0.53. Concernant la conductivité thermique λ , celle du cas test est obtenue par une loi de mélange et vaut $0.05 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Ce cas test approche de façon tout a fait satisfaisante les données expérimentales, ce qui souligne le fait que la valeur de λ utilisée dans ce travail est pertinente. Ces simulations mettent en évidence l'influence de la conductivité thermique sur l'évolution du pic de chaleur en face arrière mais également sur la dynamique du transfert de vapeur. Par ailleurs, deux cas extrêmes sont exposés. Une chaleur latente de vaporisation nulle et une conductivité thermique nulle. Dans le premier cas, il n'y a plus de couplage chaleur masse, donc pas de variation de température. La dynamique du transfert est accélérée. Dans le second cas, la chaleur ne peut pas s'évacuer et la pression partielle de vapeur dans l'échantillon va égaler la pression de vapeur extérieure. Le couplage empêche le transfert d'aller à son terme.

Ces éléments démontrent que pour ce type de matériaux, une prise en compte rigoureuse du couplage est obligatoire. Ainsi, le flux thermique généré par la présence en face arrière du disque en PVC dans la première expérience réalisée ne peut être négligée. En effet, l'échange de chaleur avec l'échantillon en face arrière limite la montée en température. Le gradient de vapeur à travers l'échantillon est donc plus important et la dynamique beaucoup plus rapide, ce qui explique en partie que le coefficient de diffusion identifié soit si élevé. Pour remédier à ce problème, il est proposé d'ajouter dans la modélisation un coefficient de transfert de chaleur équivalent en face arrière. Ce coefficient peut être identifié ou déterminé analytiquement. Une nouvelle expérience a été conduite en plaçant cette fois le capteur entre une plaque de LDF et une plaque de PVC de même épaisseur que le disque accueillant le capteur température/humidité sur la première expérience. Par une simple modélisation utilisant des résistances thermiques, une valeur de 7.1 W.K^{-1} a été obtenue. Cette valeur permet de simuler correctement les résultats obtenus en humidité relative comme en température.

Dans le chapitre 4 est décrite une nouvelle campagne d'essais utilisant la méthode d'identification de f en se basant sur l'évolution de l'humidité en face arrière. Différents matériaux de construction ont été traités : béton cellulaire, plâtre, bois massif, MDF et LDF. Durant ces essais, les matériaux ont d'abord été stabilisés dans l'enceinte

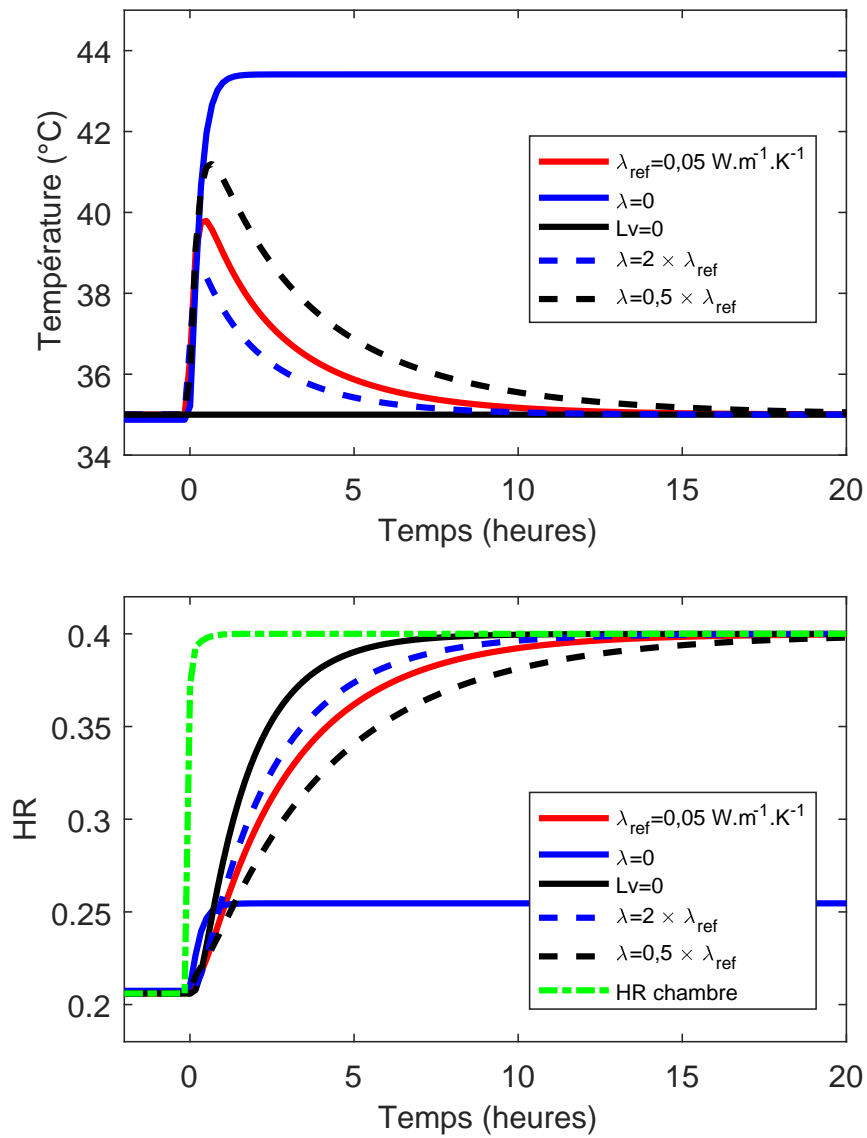


FIGURE 2.2 – Simulations de l'évolution de la température (haut) et de l'humidité relative (bas) en face arrière de l'échantillon pour diverses configurations

climatique à une humidité relative de 40% en conditions isothermes à 35 ° C. Ensuite, un saut d'humidité relative de 40 à 60 % a été réalisé. La valeur de f identifiée vaut 0.59 pour le LDF. Le modèle utilisé prend en compte le transfert de chaleur en face arrière de l'échantillon dû à la présence du disque en PVC. La valeur est assez proche de celle mesurée en régime permanent par la méthode de la coupelle (0.46), la différence pouvant s'expliquer par le phénomène de non-équilibre local.

Mise en évidence du non-équilibre local

La problématique du couplage chaleur masse ayant été traitée, nous avons cherché à mettre en évidence l'existence du phénomène de non-équilibre local à travers l'observation du déphasage entre humidité relative et teneur en eau.

Pour ce faire, un tout nouveau dispositif expérimental a été mis au point. Il permet de soumettre la face avant d'un échantillon à une perturbation de l'humidité relative ambiante puis de mesurer l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière ainsi que celle de sa teneur en eau moyenne via sa masse.

Des informations détaillées sur ce dispositif et la campagne d'essai associée peuvent être consultées en chapitre 6 et dans l'annexe B. Il est construit autour d'un robot peseur d'échantillons placé dans une enceinte climatique contrôlée en humidité et en température. Étant donné que les temps d'observation des phénomènes diffusifs peuvent être très longs, il a été conçu pour traiter jusqu'à huit échantillons dans une même campagne de mesure. La masse et l'humidité en face arrière sont mesurées séquentiellement, sans fils qui perturberaient la pesée. Comme précédemment, un disque en PVC sur lequel est placé un capteur d'humidité relative est placé à l'arrière d'un échantillon cylindrique. Un dispositif assure l'étanchéité latérale entre ces deux éléments. Cet ensemble est monté sur une structure en aluminium surmontée d'une cible liée au capteur. Elle permet d'assurer la lecture de l'information lors d'un contact temporaire. En effet, durant un mouvement ascendant réalisé par un ensemble vérin-moteur, le robot place cette cible contre des contacteurs et l'information pourra être transmise au poste de contrôle. Concernant la lecture de la masse, celle-ci est assurée lors d'un mouvement descendant, en posant l'échantillon sur un plateau lié à une balance située sous l'enceinte. Le bon déroulement de cette étape est assuré par un système astucieux de positionnement à porté conique. Le dispositif inclut un support en forme de couronne, entraîné par un plateau tournant horizontal. C'est ce mouvement de rotation qui va permet de changer d'échantillon.

Deux campagnes d'essai ont été menées, chacune avec deux types d'échantillons. Chaque échantillon ayant été répété, huit ont été traités au total. Les différents types d'échantillons sont :

- du LDF de masse volumique 145 kg.m^{-3} et de 20 mm d'épaisseur,
- du LDF de masse volumique 255 kg.m^{-3} et de 10 mm d'épaisseur,
- du LDF de masse volumique 234 kg.m^{-3} et de 19 mm d'épaisseur.
- du MDF de masse volumique 655 kg.m^{-3} et de 10 mm d'épaisseur

Pour chacune des campagnes d'essais, les échantillons ont d'abord été séchés à l'aide d'un flux d'azote. Ils ont ensuite été placés dans le dispositif expérimental avec une humidité relative imposée de 40 % et une température de 35 °C. Une fois l'équilibre atteint pour la masse et l'humidité relative en face arrière, une humidité relative de 60 % a été imposée jusqu'à l'équilibre.

Les données recueillies ont été utilisées dans une procédure d'identification du coefficient de diffusion macroscopique par méthode inverse. Cette fois-ci, l'algorithme minimise à la fois la différence entre les humidités relatives en face arrière et les teneurs en eau prédites et mesurées. Il a également été tenu compte des conclusions établies lors de l'analyse du couplage chaleur masse. La comparaison entre les simulations obtenue avec la valeur de f identifiée et les résultats expérimentaux sont visibles en figure 2.3. Il s'agit des résultats d'un échantillon de LDF de 20mm et de masse volumique 145 kg.m^{-3} . Les observations faites sont cependant valables pour les autres échantillons. On constate que les simulations ne prédisent correctement ni l'évolution de l'humidité relative en face arrière, ni celle de la teneur en eau moyenne. Cela montre bien l'existence d'un phénomène de non équilibre local. En effet, il existe un déphasage entre ces deux grandeurs. Le modèle utilisé lors de l'identification ne pouvant appréhender ce phénomène, l'algorithme de minimisation cherche un compromis entre les deux grandeurs mais ne prédit correctement l'évolution d'aucune des deux. Or, ces deux informations sont intéressantes pour la prédiction du comportement énergétique du bâtiment. L'évolution de l'humidité relative donne une information sur la quantité de vapeur transférée, la teneur en eau donne une information sur la quantité d'eau stockée dans les parois. Ces observations démontrent la nécessité de développer une formulation macroscopique pouvant appréhender ces phénomènes.

Formulation macroscopique avec effet mémoire

La formulation macroscopique développée pendant ce travail de thèse s'inspire des éléments bibliographiques présentés en 1.3.4. Des détails supplémentaires sur la formulation et son implémentation dans le code *Transpore* peuvent être trouvés en annexe A.

Comparée aux modèles classiques de transferts couplés chaleur masse, seule l'équation de conservation de la masse est modifiée. Elle se présente désormais sous la forme :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\int_0^t \varphi(t - \tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau \right) + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x, t)) = 0 \quad (2.1)$$

avec X_{eq} la teneur en eau d'équilibre définie par l'isotherme de sorption, D_{eff} le coefficient de diffusion macroscopique et φ la fonction mémoire.

Cette fonction mémoire modélise la réaction de la phase solide (la fibre dans le cas du LDF) lorsque soumise à une perturbation de l'humidité relative ambiante. Dans le cas d'un problème purement diffusif, son expression analytique est la solution du

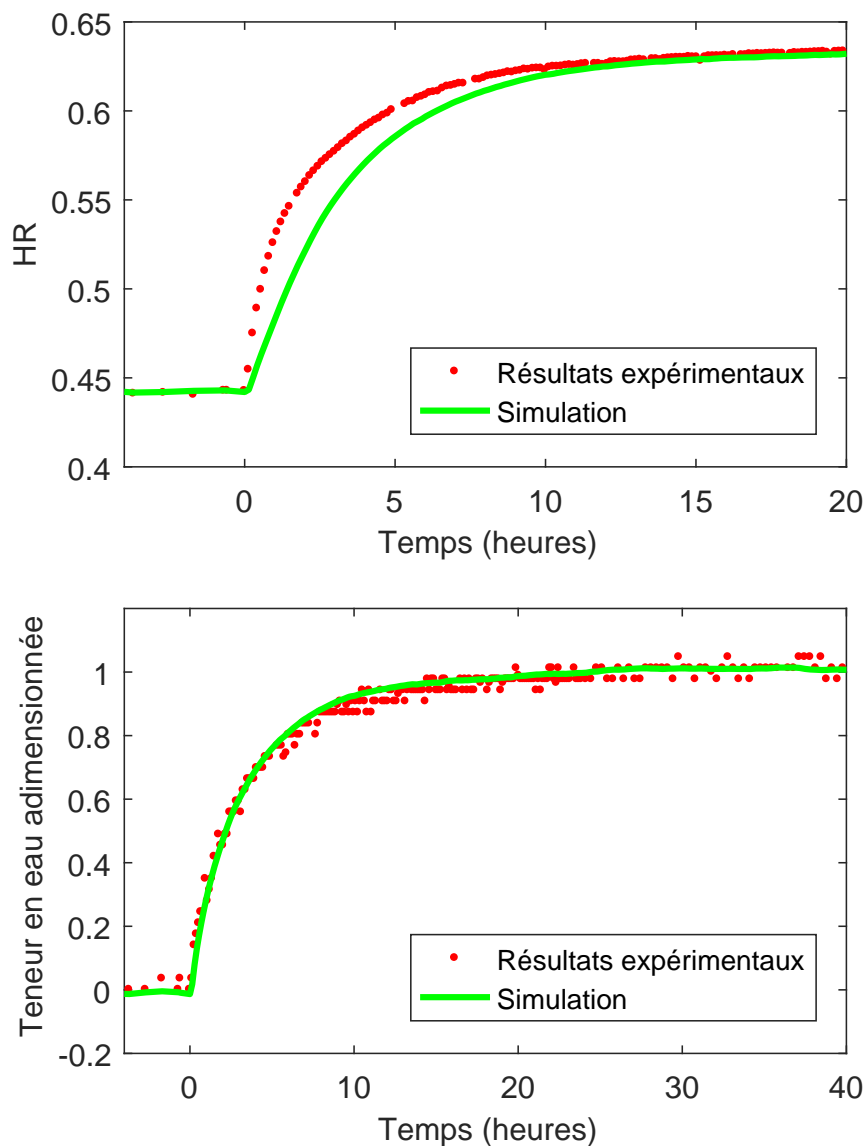


FIGURE 2.3 – Comparaison entre résultats expérimentaux et simulations pour l’humidité relative (haut) et la teneur en eau (bas) sur l’échantillon de LDF de 20 mm d’épaisseur et de masse volumique 145 kg.m^{-3}

problème de diffusion à l'échelle microscopique. Il s'agit d'une somme infinie d'exponentielle :

$$\varphi(t) = 1 - \sum_{i=1}^{\infty} \alpha_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (2.2)$$

On notera qu'en choisissant cette fonction égale à la fonction échelon (Heaviside), on retombe évidemment sur la formulation classique.

Ces fonctions peuvent être approximées correctement par une somme finie d'exponentielles. Cette forme particulière permet leur implémentation dans le code de transferts couplés *Transpore* sous la forme de variables internes. Ces variables sont mises à jour à chaque noeud du domaine de calcul en utilisant l'évolution de dX .

Détermination des fonctions mémoire

Après avoir implémenté cette nouvelle formulation, l'étape suivante a été d'identifier les fonctions mémoires pour différents matériaux. Ces fonctions, représentative des phénomènes diffusifs à l'échelle microscopique devaient par la suite pouvoir être utilisées pour prédire correctement le comportement macroscopique des matériaux.

Ce travail est détaillé dans le chapitre 5. La stratégie employée est d'étudier des échantillons très fins. En effet, en une dimension, le temps de diffusion macroscopique est fonction du carré de l'épaisseur. En réduisant suffisamment la taille d'un échantillon, ce temps macroscopique devient donc négligeable devant le temps caractéristique microscopique. Autrement dit, les effets microscopiques prédominent sur les effets macroscopiques. Les matériaux utilisés dans ce travail sont du LDF, du MDF et du bois d'épicéa dans la direction longitudinale. Les échantillons réalisés sont de petit parallélépipèdes rectangles dont les arrêtes mesurent environ 1cm. De part leur faible épaisseur, la longueur de diffusion est inférieure à 1 mm.

Le dispositif expérimental utilisé a été développé au laboratoire avant ce travail de thèse. Il est conçu autour d'une balance à suspension magnétique permettant de mesurer l'évolution de la masse d'un échantillon soumis à des paliers d'humidité relative en conditions isothermes. L'échantillon est suspendu à un crochet lié au dispositif de pesée. L'ensemble est placé dans une chambre de mesure contrôlée en humidité et en température. Dans ce travail, les échantillons étaient d'abord séchés grâce à un flux d'azote puis soumis à des paliers de 20, 40, 60 et 80 % d'humidité relative dans des conditions isothermes à 35 °C.

Similairement à ce qui avait été fait précédemment, les données servent à alimenter le code *Transpore* désormais modifié pour prendre en compte le non équilibre local grâce à la nouvelle formulation. Les paramètres à identifier permettent de définir la fonction mémoire. Cependant, comme nous l'avons vu, il apparait qu'une partie de la matière n'obéit pas aux lois classiques de la diffusion mais présente des phénomènes de relaxation moléculaire. La proportion de matière concernée et son temps de réaction

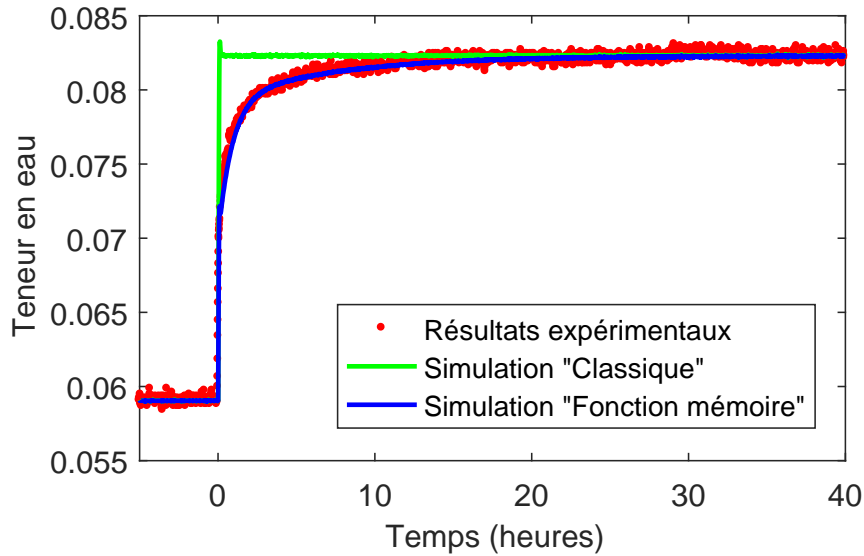


FIGURE 2.4 – Comparaison entre résultats expérimentaux et simulation avec ou sans fonctions mémoire pour le LDF sur le saut d’humidité de 40 à 60 %

sont à priori dépendant de l’humidité relative, ce qui explique la large gamme d’humidités étudiées. Afin de pouvoir analyser ce phénomène et le différencier de la diffusion "classique", les constantes de temps correspondant à chacun des termes couvrent des plages temporelles différentes. Le premier terme est lié à la diffusion classique et sa constante de temps est attendue autour de quelques minutes. Il est indicé *fd* pour *fibres diffusion*. Le second terme est lié aux phénomènes de relaxation moléculaire et sa constante de temps est attendue autour de plusieurs heures. Il est indicé *mr* pour *molecular relaxation*.

Finalement, $\varphi_{tot} = \varphi_{fd} + \varphi_{mr} - 1$ avec $\varphi_{fd} = \alpha_{fd} \exp(-\frac{t}{\tau_{fd}})$ et

$\varphi_{mr} = \alpha_{mr} \exp(-\frac{t}{\tau_{mr}})$. On cherche donc à identifier α_{fd} , τ_{fd} , α_{mr} et τ_{mr} . Une analyse de sensibilité a montré que ces paramètres pouvaient être identifiés indépendamment avec une bonne stratégie. Elle a également démontré la faible influence du coefficient de diffusion macroscopique, justifiant *a posteriori* la démarche employée.

La correspondance entre les résultats expérimentaux et les simulations obtenues pour les fonctions mémoires identifiées est excellente pour les trois matériaux sur chacun des paliers d’humidité relative. Par ailleurs, lorsque la formulation avec fonction mémoire n’est pas utilisée, la simulation est très éloignée des données expérimentales car le transfert est beaucoup trop rapide. Cela est visible en figure 2.4 pour l’échantillon de LDF sur le saut d’humidité de 40 à 60 %.

Concernant le LDF, les résultats montrent une augmentation de la constante de temps liée au phénomène de relaxation moléculaire en fonction de l’humidité relative ce qui était attendu. Cependant, la constante de temps liée au phénomène diffusif classique augmente aussi alors qu’il était plutôt attendu qu’elle diminue. En effet, il

a été montré que dans le bois le coefficient de diffusion de l'eau liée augmentait avec l'humidité relative. Nous pensons donc que la fonction de relaxation avec le temps caractéristique le plus court capture à la fois le comportement diffusif classique et de la relaxation moléculaire. Cependant, sur le saut d'humidité de 0 à 20 % le terme exponentiel avec la constante de temps la plus courte permet à lui seul de simuler le transfert. Nous pensons donc que dans ce cas, la fonction mémoire capture en grande majorité le comportement diffusif. Par ailleurs, en modélisant le LDF comme des cylindres parallèles, il est possible de définir une fonction mémoire analytique faisant intervenir un coefficient de diffusion microscopique. Il a donc été possible d'identifier celui-ci par méthode inverse.

Les résultats obtenus pour le bois d'épicéa dans la direction longitudinale sont assez proches de ceux obtenus pour le LDF ce qui est cohérent avec le fait que ces deux matériaux sont uniquement constitués de fibres de bois. Cependant, il apparaît que l'amplitude des termes et leur constantes de temps sont moindres que pour le LDF. Ceci peut s'expliquer par le fait que durant son processus de fabrication, le LDF est soumis à des hautes températures (de l'ordre de 200 °C). Or, des études ont montrées que les comportements non-Fickien étaient amplifiés après que le bois a été soumis à un traitement thermique.

Les résultats pour le MDF sont assez éloignés des deux matériaux précédents. En effet, le matériau se comporte de façon extrêmement différente entre les sauts d'humidité relative de 40 à 60% et de 60 à 80%, avec un temps de relaxation presque dix fois supérieur dans le deuxième cas. Puisque ce phénomène n'a pas été observé ni pour le LDF ni pour l'épicéa, nous l'attribuons à la présence de résine. Il est en effet probable que celle-ci qui constitue autour de 10% de la masse du matériau soit très sensible aux phénomènes de relaxation moléculaire à haute humidité relative.

Prédiction du comportement macroscopique

Au chapitre 6, les résultats obtenus sur le robot peseur d'échantillons ont été à nouveau utilisés dans une procédure d'identification par méthode inverse de f . Cette fois-ci, la nouvelle formulation alimentée par les fonctions mémoires déterminées précédemment a été utilisée. La figure 2.5 fait apparaître la comparaison entre résultats expérimentaux et simulations lorsque la procédure d'identification est faite avec ou sans fonctions mémoires pour le LDF de 20 mm d'épaisseur et de masse volumique 145 kg.m^{-3} . Comme on peut le constater, lorsque la nouvelle formulation avec les fonctions mémoires précédemment déterminées est utilisée, la correspondance entre le modèle et les résultats expérimentaux est excellente pour les deux grandeurs. La valeur de f identifiée dans ce cas est de 0.573 ce qui est en accord avec les données bibliographiques. Ces résultats confirment que la nouvelle formulation prend bien en compte les phénomènes physiques importants que sont le couplage chaleur masse et la mémoire évanescence résultant du non-équilibre local.

Ces conclusions peuvent être retrouvées pour les deux autres échantillons de LDF

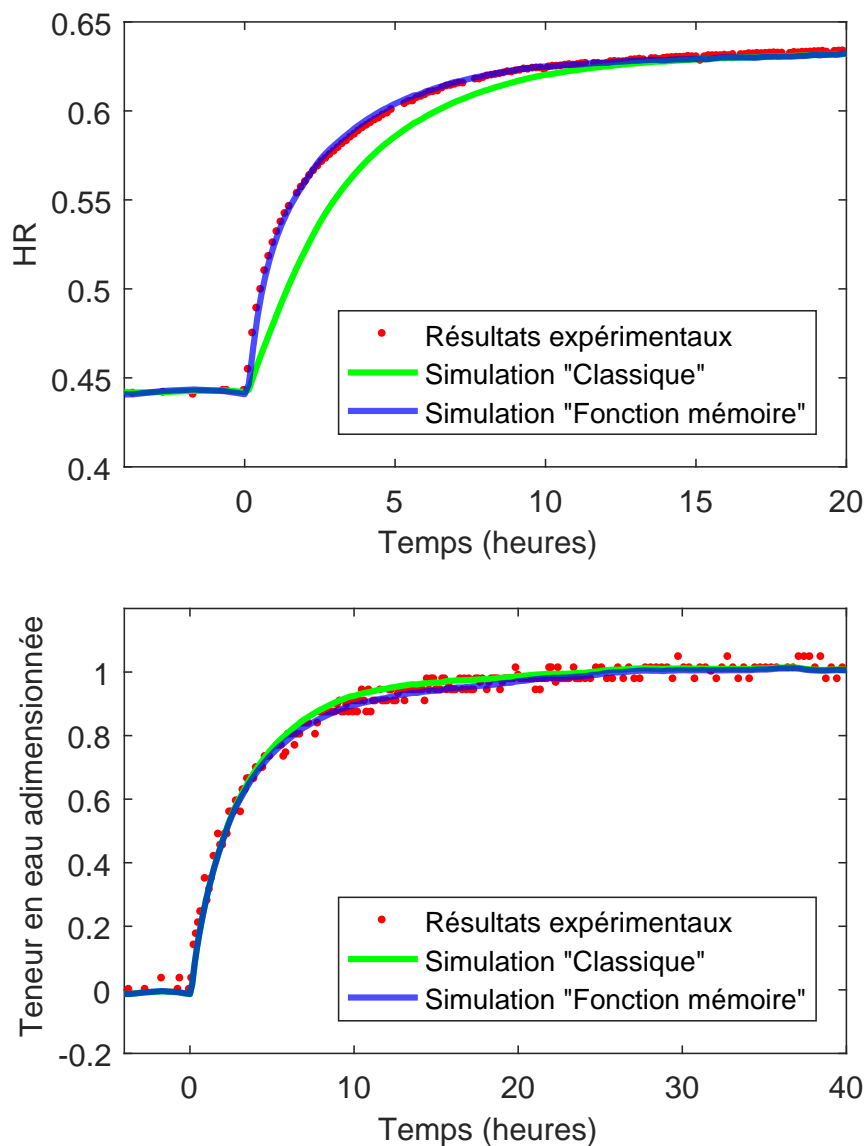


FIGURE 2.5 – Comparaison entre résultats expérimentaux et simulations avec ou sans fonction mémoire pour l'humidité relative (haut) et la teneur en eau (bas) sur l'échantillon de LDF de 20 mm et de masse volumique 145 kg.m^{-3}

(10 mm d'épaisseur avec une masse volumique de 255 kg.m^{-3} et 19 mm d'épaisseur avec une masse volumique de 234 kg.m^{-3}). En effet, dans les deux cas la correspondance entre le modèle et les résultats expérimentaux est excellente lorsque la formulation avec les fonctions mémoires déterminées précédemment est utilisée. Les valeurs de f identifiées pour les trois types de LDF sont cohérentes (0.304 pour les échantillons de 255 kg.m^{-3} et 0.404 pour ceux de 234 kg.m^{-3}), celles-ci étant des fonctions décroissantes de la masse volumique. Le fait que le modèle réalise une bonne prédiction pour différentes masses volumiques prouve d'ailleurs que la fonction mémoire caractérise uniquement des effets microscopiques. Les trois échantillons ayant la même composition microscopique, la même fonction mémoire fonctionne sur chacun d'entre eux.

On notera cependant que pour l'échantillon de 19 mm et 234 kg.m^{-3} , l'utilisation de la nouvelle formulation lors de la procédure d'identification a une influence moindre sur le résultat que pour l'échantillon de 10 mm et 255 kg.m^{-3} . L'effet mémoire est moins important dans ce cas. En effet, le temps de diffusion macroscopique étant fonction du carré de l'épaisseur, la fibre a dans ce cas plus de temps pour atteindre l'équilibre. Ainsi, on constate bien que l'effet de non-équilibre disparaît progressivement lorsqu'on augmente l'épaisseur du matériau.

Concernant le MDF, les simulations obtenues avec ou sans l'effet mémoire sont similaires. En effet, pour ce matériau la valeur identifiée pour f est de 0.036 soit un ordre de grandeur au-dessous de ce qui avait été trouvé pour les différents échantillons de LDF. En conséquence, le temps de diffusion macroscopique est suffisant pour assurer l'équilibre localement. Cependant, on notera que le modèle ne réussit pas à prédire correctement les deux grandeurs. Notre approche indique que ces différences ne proviennent pas d'effets microscopiques. Nous soupçonnons qu'elles aient pour origine le profil de contrainte dans le matériau. En effet, s'agissant d'un matériau structural les phénomènes de gonflement génèrent des états de compression et de tension qui ne sont pas uniformes dans l'épaisseur de l'échantillon. Or, les contraintes peuvent influencer localement sur la teneur en eau d'équilibre et donc générer des effets similaires au non-équilibre local.

Conclusion

En figure 2.6, le lecteur pourra consulter un schéma récapitulatif des différents aspects de la thèse. Ce schéma renvoie vers les différents chapitres et annexes. Il rappelle la façon dont ceux-ci interagissent.

Ce travail s'était donné pour objectif de réussir une prédiction correcte des transferts hygrothermiques dans les matériaux biosourcés utilisés dans le domaine de la construction. En effet, diverses études avaient montré qu'il existait des différences importantes entre simulations dynamiques et résultats expérimentaux. Cela est encore plus prononcé pour les matériaux fibreux destinés à l'isolation tels que les panneaux de fibres de faible densité. Au cours de ce travail, nous avons en particulier investigué l'influence du couplage chaleur-masse et l'existence de phénomènes de non-équilibre à

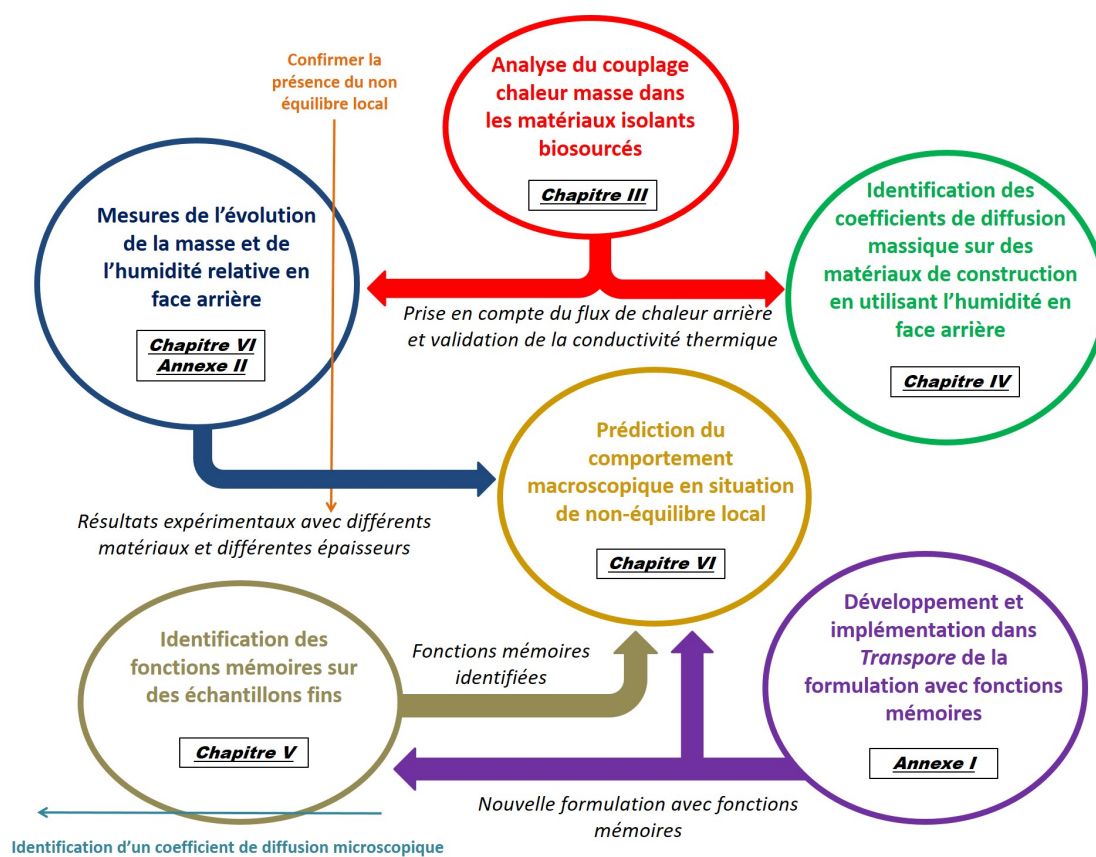


FIGURE 2.6 – Schéma récapitulatif de l'organisation du travail de thèse

l'échelle locale.

Concernant le couplage chaleur masse, il a été montré grâce à une expérience originale que son impact lors de la caractérisation de matériaux isolants biosourcés était déterminant. En particulier, l'influence de la conductivité thermique sur la dynamique des transferts de masse en régime transitoire a été soulignée. De la même manière, une prise en compte rigoureuse des transferts de chaleur externes est impérative. Ces conclusions ont notamment été appliquées à une méthode d'identification de la diffusivité massique de matériaux de construction utilisant l'évolution de l'humidité relative en face arrière d'un échantillon.

Concernant le phénomène de non équilibre local, une nouvelle formulation a été proposée pour le prendre en compte. Celle-ci se base sur l'utilisation de fonctions mémoires caractérisant le comportement diffusif du matériau à l'échelle microscopique. Cette nouvelle formulation a été implémentée dans le code de calcul *Transpore*. Par la suite, ces fonctions ont été identifiées par méthode inverse à partir d'essais de gravimétrie d'adsorption réalisés sur de très petits échantillons de LDF, de MDF et d'épicéa en direction longitudinale. De cette manière, les effets macroscopiques étaient négligeables devant les effets microscopiques.

En parallèle, un nouveau dispositif expérimental a été conçu. Celui-ci permet de soumettre un échantillon de quelques centimètres d'épaisseur à une perturbation de l'humidité relative sur sa face avant puis de mesurer simultanément l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière et de sa masse. Ce dispositif a été utilisé sur des échantillons de LDF d'épaisseurs et de masses volumiques différentes, ainsi que sur du MDF. Ces essais ont confirmé l'existence d'un phénomène de non équilibre local. En effet, en utilisant ces résultats dans une procédure inverse pour identifier la diffusivité massique, on observait un déphasage entre ces deux grandeurs que la formulation de transferts couplés classique n'arrivait pas à prédire.

Une nouvelle procédure inverse d'identification de la diffusivité massique a été réalisée avec la nouvelle formulation alimentée par les fonctions mémoires précédemment déterminées. Pour les échantillons de LDF, le coefficient identifié permet une excellente prédiction des deux grandeurs. Cela démontre bien l'origine microscopique du phénomène observé ainsi que la cohérence de la démarche. On constate par ailleurs que l'effet du non équilibre est plus prononcé pour les échantillons de faible épaisseur, ce qui est également cohérent. En revanche, la prédiction ne fonctionne pas pour le MDF ce qui laisse supposer que pour ce matériau structural, l'origine du déphasage provient d'un état de contrainte non-homogène dans l'échantillon.

Grâce à une analyse rigoureuse du couplage chaleur masse, une nouvelle formulation prenant en compte le non équilibre local et le développement d'un nouveau dispositif expérimental, cette étude a donc bien permis d'améliorer de façon significative la prédiction des transferts hygrothermiques dans les matériaux isolants biosourcés.

Perspectives

Les perspectives de ce travail sont nombreuses, l'objectif étant bien sûr une meilleure prédiction des consommations énergétiques des bâtiments composés de matériaux biosourcés.

Il serait dans un premier temps nécessaire d'identifier les fonctions mémoires lors d'un cycle de désorption. On pourrait alors vérifier si celles-ci sont les mêmes que lors du cycle de sorption.

Le nouveau dispositif expérimental pourrait ensuite également être utilisé lors de cycles de désorption afin de valider la qualité de la prédiction dans ce cas-ci. Il serait ensuite possible de l'utiliser avec des sollicitations cycliques, cela nécessitant alors un modèle prenant en compte l'hysteresis de l'isotherme de sorption de façon performante.

Ces différentes campagnes expérimentales ayant été menées, il sera alors envisageable d'implémenter cette formulation dans un code pouvant simuler l'évolution de l'état hygrothermique d'un bâtiment entier. Une campagne de mesures in-situ permettrait alors d'évaluer la qualité des prédictions.

Par ailleurs, ce travail a mis en lumière la variété des approches possibles pour identifier les paramètres macroscopiques influant sur les transferts hygrothermiques dans les matériaux biosourcés. Il serait alors judicieux d'évaluer comment les différents acteurs du secteur pourraient s'approprier ces nouvelles méthodes.

Enfin, si les panneaux de fibres ont été au centre de ce travail de thèse, la démarche générale doit pouvoir s'appliquer aux autres matériaux biosourcés utilisés dans la construction.

Chapitre 3

Impact du couplage chaleur masse sur la caractérisation des matériaux isolants hygroscopiques

3.1 Introduction

Les phénomènes physiques mis en jeu dans ce travail de thèse concernent principalement des matériaux à la fois fortement hygroscopiques et diffusifs à la vapeur d'eau. Ainsi, les panneaux de fibres de faible densité (ou LDF pour low density fiberboard) sont particulièrement étudiés. Ces matériaux sont utilisés en tant qu'isolant. Ils ont donc naturellement une conductivité thermique faible. Cette association d'une faible conductivité thermique, d'une forte diffusivité massique et d'une hygroscopie importante exacerbe le couplage chaleur/masse ce qui complexifie les interprétations des résultats expérimentaux et peut aboutir à des erreurs d'analyse. Ce chapitre se propose, au travers d'une campagne expérimentale et de simulations, d'analyser ces phénomènes.

Le dispositif expérimental utilisé consiste en un capteur d'humidité relative et de température, fixé entre deux plaques de LDF. Cet ensemble est placé dans une enceinte climatique contrôlée en humidité relative et en température. En se plaçant en conditions isothermes, on fait alors varier l'humidité relative à l'intérieur de l'enceinte tout en enregistrant l'évolution des deux grandeurs entre les deux plaques. On y constate alors une élévation de la température très conséquente.

L'analyse de ce phénomène est faite via diverses simulations numériques utilisant un code permettant de simuler les transferts couplés dans les matériaux biosourcés (*Transpore*). Ces simulations mettent notamment en avant l'impact de la conductivité thermique sur la valeur du pic de température observé ainsi que sur la dynamique du

transfert de masse. Il est ainsi souligné qu'une mauvaise prise en compte du couplage chaleur/masse peut aboutir à d'importantes erreurs lors d'une procédure d'identification de paramètres.

Par ailleurs, une analyse physique des différents phénomènes mis en jeu permet d'aboutir à un nombre adimensionné qui quantifie l'intensité du couplage pour le matériau et la configuration expérimentale retenue. Cet impact est bien sûr particulièrement important pour le LDF.

Ce travail sera publié dans **International Journal of Heat and Mass Transfer** en avril 2019.

On the importance of heat and mass transfer coupling for the characterization of hygroscopic insulation materials

Patrick Perré ^{a,b,*}, Arnaud Challansonnex^a, Julien Colin^{a,b}

^a*LGPM, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, 8-10 rue Joliot-Curie,
91 190 Gif-sur-Yvette, France*

^b*LGPM, CentraleSupélec, Centre Européen de Biotechnologie et de Bioéconomie (CEBB), 3 rue des
Rouges Terres, 51 110 Pomacle, France*

Abstract

This work is focused on mass transfer characterization of hygroscopic materials used for insulation, such as low density fiberboards (LDF). Due to their particular morphology, these panels present a very high mass diffusivity due to the connected gaseous phase together with a very low thermal conductivity. This combination of properties exacerbates the coupling between heat and mass transfer in transient state. Based on experimental data obtained with an original set-up and relevant simulations performed using a comprehensive physical formulation, a throughout vision of this question is proposed in the present study. In particular, we emphasize on:

- The impressive change in core temperature in terms of magnitude and duration,
- The great impact of the internal temperature gradient, which slows down mass diffusion,
- The dramatic error on mass diffusivity value if the coupling is ignored,
- The possible determination of thermal conductivity during transient sorption tests.

A dimensionless number N_c was derived to quantify the intensity of this coupling. Finally, a practical example is proposed that confirms the importance of heat and mass transfer coupling in the case of LDF, and at the same time, proves that this effect can be controlled and corrected by using a relevant physical formulation.

Keywords: building, energy, experiment, identification, modelling, RH at back face, transient state

1. Introduction

Establishing good thermal performances of constructions is getting more and more challenging and designers need to model physical phenomena with great accuracy[1, 2, 3].

*Corresponding author

Email address: `patrick.perre@centralesupelec.fr` (Patrick Perré)

Among them, the strong influence of coupled heat and mass transfer on energy consumption is well established. This is especially true for renewable materials, which generally have a high moisture buffering effect [4, 5]. Consequently, Building Energy Simulations (BES) models must account for coupled heat and mass transfer [6, 7], which gave rise to a strong demand for mass transfer characterization: mass diffusivity and sorption isotherms [8, 9]. In addition, due to side effects such as molecular relaxation, dual-scale effects, sorption hysteresis [10, 11], these materials must be characterized in transient state as these materials never undergo constant conditions in buildings [12, 13]. However, the characterization of hygroscopic materials is not simple as, due to the latent heat of vaporization, no mass transfer can occur without heat transfer. Consequently, the temperature field is not uniform in the sample, which induces gradients of saturated water vapor, well known to affect mass diffusion. The present work is focused on a particular family of building materials: Low Density Fiberboards (LDF) or other hygroscopic insulation materials. These materials have a large and connected gaseous phase together with an hygroscopic solid phase. This builds up a porous medium with presents, regarding mass transfer, a conductive phase interacting with a storage phase. Such media are likely to present dual-scale phenomena [14, 10, 15]. In addition, molecular relaxation was also reported in lignocellulosic products [16, 17, 18]. All these memory effects have a significant impact on the energy balance in building and deserve attention.

Indeed, the importance of the coupling between heat and mass transfer in this kind of materials became evident when we started to analyze more subtle phenomena such as dual-scale modeling or molecular relaxation. A rigorous study of these effects required careful experiments to be conceived and performed. However, when analyzing a series of experimental data obtained in our laboratory to address these phenomena, we observed a strong, unexpected, influence of thermal conductivity on the identified parameters. Due to their particular morphology, these materials present a very high mass diffusivity, together with a very low thermal conductivity. As these materials are highly hygroscopic, this combination of properties exacerbates the coupling between heat and mass transfer in transient state. This observation forced us to further investigate this dramatic effect of heat and mass coupling for these materials. Coupled heat and mass transfer in lignocellulosic products must therefore be carefully addressed before the memory effects can be seriously investigated.

The in-depth experimental and theoretical analysis proposed in the present paper and the warning message to the scientific community were motivated by this fact. Configurations in the present work were intentionally chosen to reduce the two memory effects reported in lignocellulosic products : molecular relaxation remains low at RH values less than 60% and for thick LDF slabs, the time constant due to dual-scale effects becoming smaller than macroscopic time constant of diffusion.

The paper is structured as follows. Section 2 is devoted to the experimental part. It includes the description of samples and the experimental configuration. Original experimental data are presented that emphasizes the importance of temperature overshoot in the centre of the slab. Section 3 details the general framework and assumptions of coupled heat and mass transfer formulation. An in-house computational model able to solve this set of equations is then used in section 4 to simulate the experimental test. Using physical parameters from literature, the simulation perfectly confirms the temperature overshoot.

The effect of heat flux on the dynamic of mass transfer is further investigated using the computational code as a tool. Section 5 develops an analytical method that proposes a dimensionless number able to simply quantify the importance of coupling, as a function of material properties and sorption conditions. Finally, section 5 proposes and validates a practical rule to accurately determine the dimensionless mass diffusivity using the back-face method of the sample [19] even though this back-face is not perfectly insulated regarding heat transfer.

2. Experiment

2.1. *Experimental set-up*

The material used in the present work is LDF (160 kg.m^{-3} low-density fiberboard produced by Steico, Munich, Germany). The experiment consists in submitting a sample face to a sudden variation of relative humidity (RH) and to record the evolution of RH on the opposite face [19]. The experiment was designed to obtain 1-D transfer without any heat and mass flux at the back face of the sample (Fig. 1). For that purpose, a temperature/RH sensor (Sensirion SHT75, HDI Electronics, Perois, France) was placed between two 20-mm thick plates of LDF. Side effects were avoided by choosing large dimensions ($30 \text{ cm} \times 30 \text{ cm}$), which is more than 7 times the diffusion thickness. Finally, to avoid lateral water vapor leakages, the two superimposed LDF plates were coated with an aluminium foil glued to the lateral faces by epoxy resin. Since the sensor is placed in the middle of the plates, one can consider that the flux only occur in 1-D in the vertical direction. This double sample is placed inside a climatic chamber (HPP110, Memmert, Schwabach, Germany) to control external conditions. Good ventilation inside the chamber ensures a symmetrical convective flux on each side of the double sample. Three temperature/RH sensors are placed inside the chamber to record the actual conditions applied to the sample.

2.2. *Experimental results*

Figure 2 presents a typical example of experimental data. This test was performed for a double layer of LDF panel ($\rho = 160 \text{ kg.m}^{-3}$, thickness = $2 \times 20 \text{ mm}$) for a stepwise change of RH from 20% to 40% at 35°C . Low RH values were intentionally chosen to reduce the effect of molecular relaxation on the dynamic of sorption equilibrium [20, 17]. The RH measured at the back-face of the sample needs about 10 hours to reach the new external RH. This information was already used to identify the dimensionless mass diffusivity of the panel in the method proposed in [19]. The novelty of this work is to also measure the temperature at the back-face of the sample as can be seen on figure 3. This value is relevant thanks to the experimental configuration: as the back-face of the sample is the value in the centre of two large plates, the assumption of 1-D transfer is valid and no artefact of heat transfer is likely to perturb the temperature value. As a result, we can observe an impressive temperature peak due to condensation: this peak is large in magnitude (more than 4°C above the ambience) and in duration (more than 10 hours, the same duration as for mass transfer). Temperature peaks due to coupling were already observed in previous studies on bio-based materials [21, 22, 23] but, to the best of our knowledge, not with such an important magnitude and duration. The results presented here are therefore original, certainly because purely 1-D transfer can only be obtained with

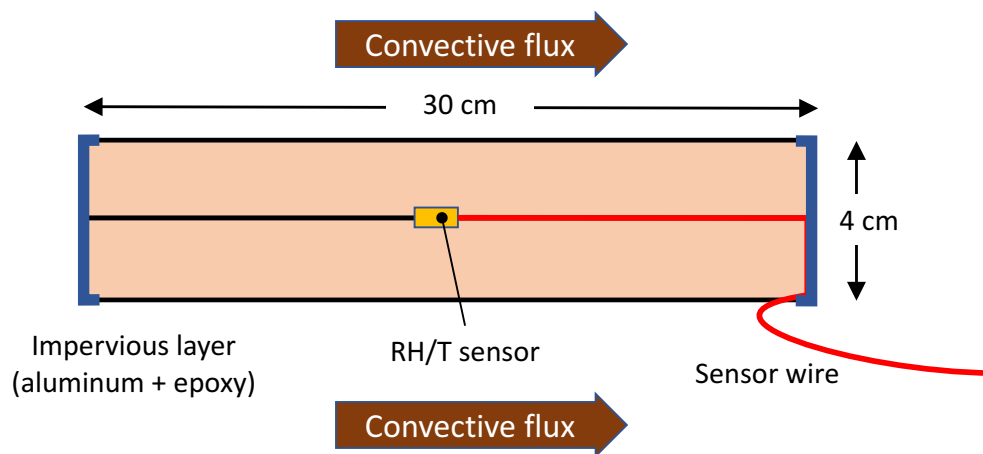


Figure 1: Schematic cross-sectional view of the double plate (top) and photograph of the sample placed inside the climatic chamber (bottom).

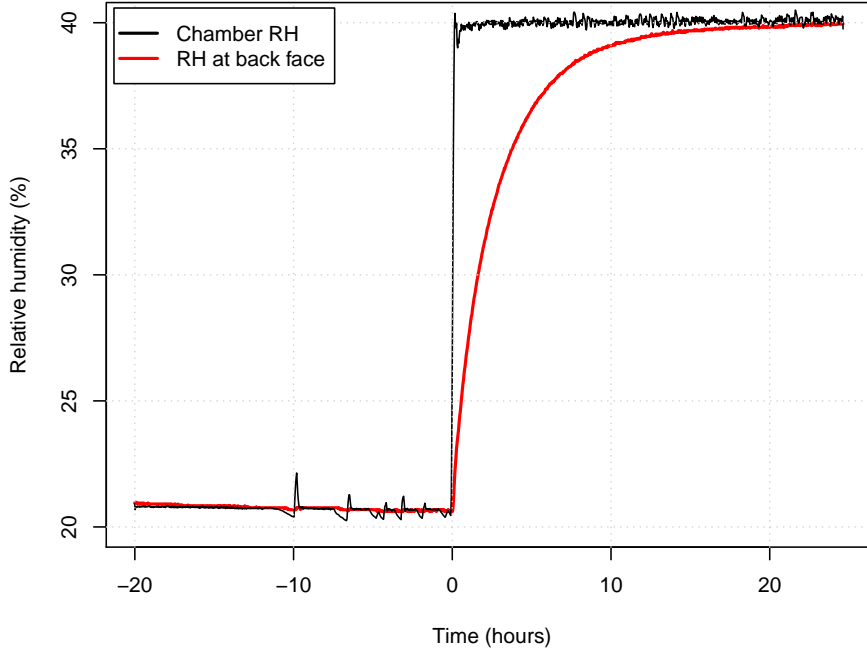


Figure 2: Experimental results for a double plate (2 x 20 mm) of LDF (160 kg.m^{-3}): time evolution of relative humidity at back face on the plate.

great care with insulation materials. The next section uses simulations performed using the comprehensive formulation of coupled heat and mass transfer to analyse this impressive coupling and its effect on material characterization.

3. Macroscopic formulation

A comprehensive physical formulation was used in the present work. More detailed information regarding this set of equations can be found in published works [24, 25]. In this model, suitable for bio-based materials, water exists in three different forms:

- liquid water inside the voids, that is transport by capillarity,
- bound water adsorbed by the fibers cell walls, that is transport by diffusion,
- water vapor inside the voids, that is transport by diffusion and gas advection,

For the sake of simplification, all liquid water contributions have been discarded, as the sample stays inside the hygroscopic domain. Similarly, considering the particular morphology of the material, one can make the hypothesis that a very large majority of the mass transfer occurs in the gaseous phase. Thus, the transport terms of bound water have been discarded. The simplified transport equations read as follows:

Moisture conservation

$$\rho_s \frac{\partial X}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_v \bar{v}_g) = \nabla \cdot (\rho_g \mathbf{f} \mathbf{D}_v \cdot \nabla \omega_v) \quad (1)$$

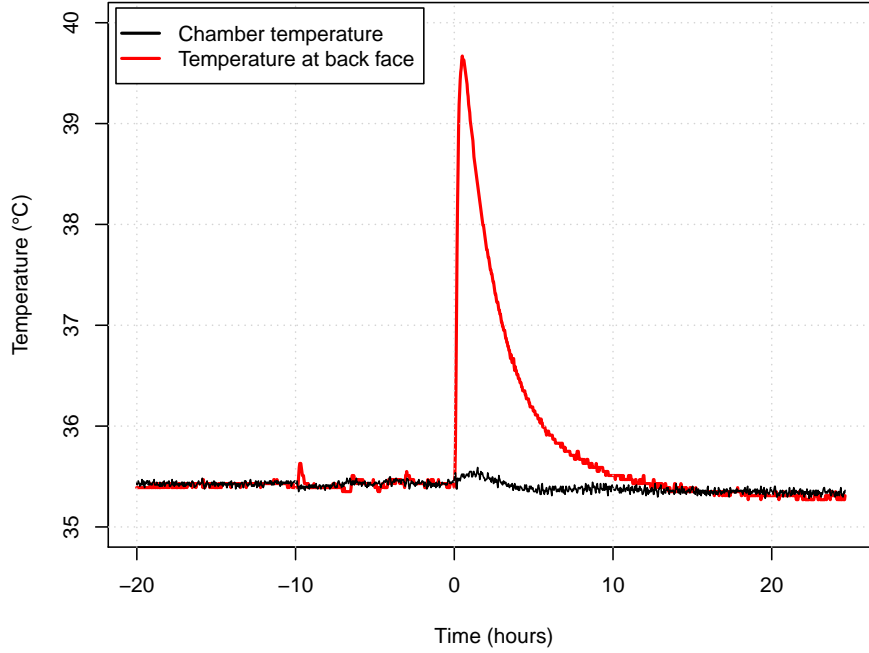


Figure 3: Experimental results for a double plate (2 x 20 mm) of LDF (160 kg.m^{-3}): time evolution of temperature at back-face of the plate. The temperature peak (39.7°C) occurs at 0.50 hour.

Energy conservation

$$\frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_g(\rho_v h_v + \rho_a h_a) + \bar{\rho}_b \bar{h}_b + \varepsilon_s \rho_s h_s) + \nabla \cdot ((\rho_v h_v + \rho_a h_a) \bar{\mathbf{v}}_g) = \nabla \cdot (\lambda_{eff} \nabla T + \rho_g \mathbf{f} \mathbf{D}_v (h_v \nabla \omega_v + h_a \nabla \omega_a)) \quad (2)$$

Air conservation

$$\frac{\partial (\varepsilon_g \rho_a)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_a \bar{\mathbf{v}}_g) = \nabla \cdot (\rho_g \mathbf{f} \mathbf{D}_v \nabla \omega_a) \quad (3)$$

Boundary conditions

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_w|_{x=0^+} \cdot \mathbf{n} &= k c M_v \ln \left(\frac{1 - x_\infty}{1 - x_v|_{x=0}} \right) \\ \mathbf{J}_q|_{x=0^+} \cdot \mathbf{n} &= h (T|_{x=0} - T_\infty) \\ P_g|_{x=0^+} &= P_{atm} \end{aligned} \quad (4)$$

In the following equation, the barycentric mass velocities comes from the generalized Darcy's law

$$\bar{\mathbf{v}}_g = -\frac{\mathbf{K} \mathbf{k}_g}{\mu_g} (\nabla p_g - \rho_g \nabla \psi_g) \quad (5)$$

The previous set of equations assumes that the porous medium is locally at equilibrium. This implies that :

- the temperature is the same for all phases $T_s = T_w = T_g$
- the partial pressure of water vapor inside the gaseous phase is related to the moisture content X via the sorption isotherm $p_v = p_{vs}(T) \times a(T, X)$, where function a is the sorption isotherm of the product, also called water activity, namely in food science.

The second assumption needs the phases to be locally at equilibrium. As stated in the introduction, hygroscopic insulation materials are likely to present two memory effects (dual-scale effect and molecular relaxation). Our team is currently working on a new formulation able to account for these effects at the macroscopic level [26]. However, the present work is focused on the coupling between heat and mass and the configuration of interest limits the importance of the dual-scale effects, so that the classic macroscopic model might be used.

Further simplifications or assumptions allowed this set of equation to take this convenient form:

- the variation of partial densities inside the REV are negligible, so the intrinsic average is equal to the local value $\bar{\rho}_v^g = \rho_v$ and $\bar{\rho}_a^g = \rho_a$,
- the solid density is assumed to be constant $\rho_s = constant$,
- the moisture content X is used to consider the total amount of water present in the porous medium $\rho_s X = \varepsilon_g \bar{\rho}_v^g + \bar{\rho}_b$,
- the effective diffusivity is expressed as a function of the binary diffusivity of vapor in air : $\mathbf{D}_{eff} = \mathbf{f} \mathbf{D}_v$, where \mathbf{f} is a dimensionless diffusivity tensor (indeed, along one given direction, $f = 1/\mu$ where μ is the *vapor resistance ratio* used for building materials),
- the pressure is supposed to be almost constant in terms of its absolute value. This means that the variation of pressure on the enthalpy balance can be omitted, while keeping the effect of its gradient in Darcy's law.

These equations are able to compute the coupling between heat and mass transfer occurring inside building materials. This set of equations allows three independent variables to be computed (for example, temperature or enthalpy, moisture content, air density or gaseous pressure). This is required, for example, if an important part of mass transfer occurs as convective flow (Darcy's regime).

4. Simulation results

The simulations are performed in 1-D for a 20-mm thick sample. The external conditions (T and RH) imposed at $x = 0\text{ mm}$ correspond to the average of the three sensors placed inside the climatic chamber. At $x = 20\text{ mm}$ (the back-face), the heat and mass fluxes are set to zero. Our reference test was simulated using the following physical parameters. The value of thermal conductivity ($\lambda_{eff} = 0.05\text{ W.m}^{-1}.K^{-1}$) is determined by a classical mixture law using the gaseous and solid volume fractions and their conductivities

[27]. The sorption isotherm is defined by the Hailwood-Horrobin model [28], using the adsorption envelop curve [29]: $RH/X = 2.76 + 15.84 \times RH - 15.26 \times RH^2$. The intrinsic permeability ($K = 6.5 \times 10^{-11} m^2$) comes from experimental measurements [30]. With such a large permeability value, the barycentric movement of the gaseous phase induced by water vapor diffusion hardly alters the gaseous pressure, which remains very close to the atmospheric pressure. These physical phenomena are anyway considered in the model. Finally, the dimensionless diffusivity is the sole parameter that was adjusted. Its value ($f = 0.54$) was identified from the experimental RH evolution at the back-face as explained in [19]. Both values are consistent with literature data [31, 32]. In particular, this value of f is in very good agreement with its determination from the real morphology of LDF using an upscaling method [27].

Figure 4 depicts simulation results for the reference test. After the sudden increase in RH, water vapor condensates on the front face of the sample. By releasing the latent heat of vaporization, this moisture flux heats up the surface. Because of this temperature increase, the vapor pressure at the surface increases as well, as it is the product of water activity by the saturated vapor pressure, which increases rapidly with temperature. The primary effect of this change in surface vapor pressure is to reduce the external driving force, which slows down the process [33]. This temperature increase eventually affects the whole sample, by a tricky coupling of heat and mass transfer: the temperature increase at one point increases the mass fraction of vapor, which gives rise to a vapor flux that condensates in neighboring parts. In turn, condensation increases the temperature further inside the medium, which allows the process to continue inwards. This produces a "heat wave" propagating towards the back-face, clearly visible on the temperature profiles. Once this wave reaches the back-face of the sample, a temperature gradient establishes towards the external face, to drive outwards the heat supplied in the medium via the latent heat of vaporization. In figure 4, the effect of this temperature gradient on the mass fraction of vapor is obvious, namely for the profiles at 10 and 30 minutes: although the internal value of moisture content (MC) is still close to the initial value, the mass fraction of vapor already increased significantly due to the temperature rise.

The model is also able to compute the time evolution of the two variables measured during the experiment: temperature and RH at the back face of the sample (Figures 5 and 6). The reference test is in perfect agreement with the experiment. For example, the temperature peak occurs at 0.47 hour for a maximum temperature equal to $39.8^\circ C$. To further investigate the effect of heat and mass coupling, several virtual configurations were computed:

- **Modified thermal conductivity** ($\times 2$ and $\times 0.5$): these simulations exhibit the crucial effect of thermal conductivity, not only on the temperature overshoot (peak at respectively $38.6^\circ C$ and $41.2^\circ C$ instead of $39.8^\circ C$). The peak time changes also significantly (peak respectively at 0.34h and 0.67h instead of 0.50h). Indeed, when the thermal conductivity decreases, heat dissipation is slowed down. Consequently the temperature peak is higher and shifted to larger times. The effect of the temperature field on the dynamic of RH evolution is also evident.
- **No heat and mass coupling**: the coupling is easily canceled by setting the latent heat of vaporization, L_v , to zero. Consistently, the temperature remains at the

Model	Value of f identified	Temperature peak
Reference test	0.54	39.8°C
$\lambda = 0.5 \times \lambda_{ref}$	2.5	42.2°C
$\lambda = 2 \times \lambda_{ref}$	0.38	38.1°C
No coupling ($L_v = 0$)	0.28	35.0°C

Table 1: Effect of modifying heat transfer on the identified value of f and on the peak temperature.

external temperature. As a consequence of the absence of coupling, the dynamic of RH evolution is much faster (2.5 hours instead of 4.3 hours for the reference test to attain 35% of RH). This confirms the importance of the heat and mass coupling on the global behavior,

- **No internal heat transfer:** setting the conductivity to zero cancels the heat flux inside the sample. Consequently, the latent heat of vaporization released by condensation cannot be driven towards the exchange face. A balance between water intake and temperature rise takes place: the amount of water condensed in the solid phase raises the temperature until the mass fraction of vapor equals the external value. The steady-state is obtained with an MC increase of 0.5% (against ca. 2% for the reference test) and a temperature of 43.4°C. In this extreme, virtual, configuration, the coupling completely stops mass transfer !

In order to emphasize the effect of heat transfer on the identified value of f , the experimental data was used as input data for the identification procedure with for several assumptions regarding heat conduction inside the sample . By inverse analysis, the f is then adjusted to get the best fit for RH evolution in spite of an wrong value for thermal conductivity (Table 1). In each case, the peak temperature was also recorded. For a lower thermal conductivity ($\times 0.5$), an unrealistic f value of 2.5 was obtained. Indeed, a diffusivity much larger than the diffusion of vapor in air is needed to compensate for the slowing of mass transfer due to the temperature gradient. In turns, this induces a large demand for latent heat of evaporation which produces a temperature peak at 42.2°C. The effect is opposite when increasing the thermal conductivity ($\times 2$): f is reduced to 0.38 against 0.54 for the reference test and the temperature peak to 38.1°C instead of 39.8°C. The absence of heat and mass transfer coupling further reduces the value of f to 0.28. From these values, one has to notice that, when adapting the value of f to obtain the right kinetics for the RH evolution at back face, the effect on the temperature peak is even more important than for the simulation proposed in figures 6 and 5.

This set of identification suggests that the two pieces of information collected at the back face of the sample (RH and temperature) could possibly be used to identify two important parameters of insulation panels : dimensionless diffusivity f and thermal conductivity λ_{eff} .

5. Analytical analysis

A simple analytical analysis is proposed in this section to express the temperature overshoot at the back-face of the sample. The local continuous expressions for the heat

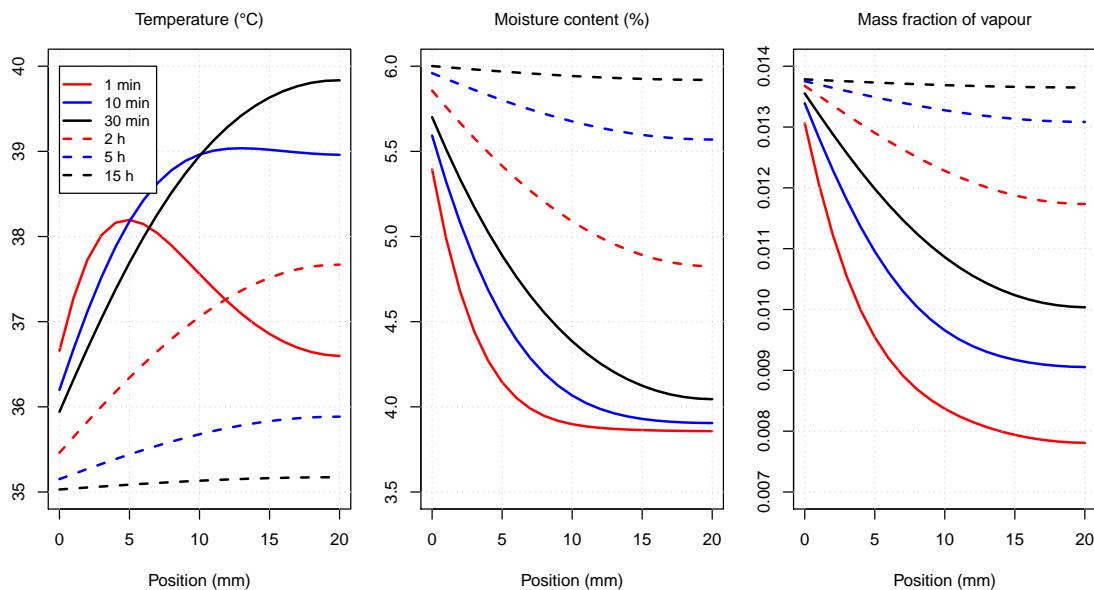


Figure 4: Profiles (the external face is at 0 mm and the symmetry plane at 20 mm) computed at selected times for the reference test ($f = 0.54$ and $\lambda = 0.05 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$).

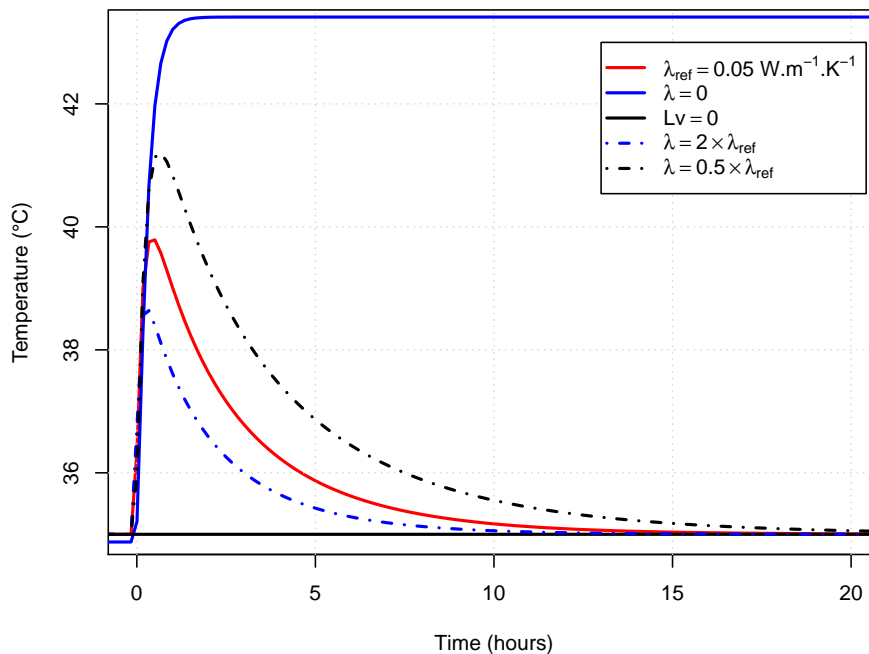


Figure 5: Simulation results for LDF (160 kg.m^{-3}): evolution of temperature at the back-face of the plate during an adsorption step. The various virtual configurations tested are defined in the legend.

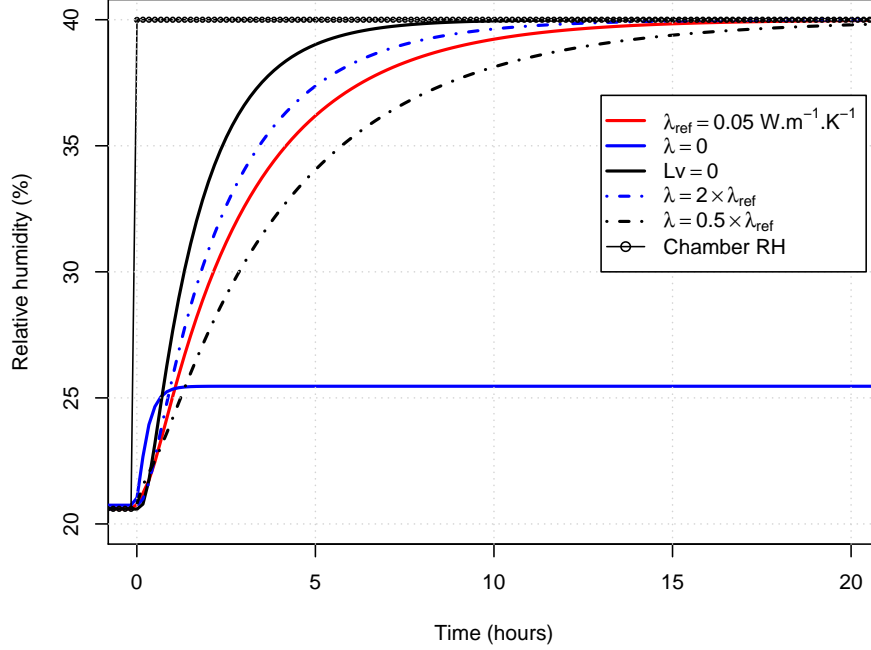


Figure 6: Simulation results for LDF (160 kg.m^{-3}): evolution of relative humidity at the back-face of the plate during an adsorption step. The various virtual configurations tested are defined in the legend.

and vapor fluxes inside the medium (equations 1 and 2) are linearized over the sample thickness ℓ :

Vapour flux towards the sample core

$$q_v = -\rho_g \mathbf{f} D_v \frac{\omega_v L - \omega_{v\infty}}{\ell} \quad (6)$$

Heat flux towards the exchange surface

$$q_h = -\lambda_{eff} \frac{T_L - T_\infty}{\ell} \quad (7)$$

Neglecting the heat required to heat-up the medium, the heat and mass fluxes are related via the latent heat of vaporization:

$$q_h = -L_v q_v \quad (8)$$

This assumption is quite classic as soon as evaporation or condensation is involved. For example, for a 200 kg.m^{-3} LDF board, an increase in moisture content of 4% represents a latent energy of 2.10^7 J.m^{-3} while an increase in temperature of 5°C requires $1.4.10^6 \text{ J.m}^{-3}$, only 7% of the latent energy.

In order to obtain a useful expression, further assumptions were made:

- A stepwise variation of RH is assumed, from RH_{ini} to RH_{fin} . The sample is supposed to be equilibrated at RH_{ini} at the beginning of the sudden change,

- As the peak is observed at short times, the heat and vapor flux will be expressed using this initial field,
- The effect of temperature on the vapor pressure is obtained by a first order development of the saturated vapor pressure curve,
- The gaseous density is supposed to be constant in time and in space.

With these assumptions, straightforward calculations allow equations (6-8) to be combined as follows :

$$\lambda_{eff}\Delta T = \mathbf{f} \mathbf{D}_v L_v \rho_{vs} \left(RH_{fin} - RH_{ini} (1 + \Delta T P'_{vs}/P_{vs}) \right) \quad (9)$$

with $\rho_{vs} = \frac{P_{vs} M_v}{RT}$

The temperature increase, ΔT , can then be expressed as a proportion of $\Delta RH = RH_{fin} - RH_{ini}$:

$$\Delta T = \frac{\beta \Delta RH}{\lambda_{eff} + \beta RH_{ini} P'_{vs}/P_{vs}} \quad (10)$$

with $\beta = \mathbf{f} \mathbf{D}_v L_v \rho_{vs}$

When expressing the saturated vapor pressure as an Arrhenius law ($P_{vs}(T) = P_0 \exp(-E/RT)$), the ratio of derivative over the value becomes :

$$\frac{P'_{vs}}{P_{vs}} = \frac{E}{RT^2} \quad (11)$$

Applying expression (10) with the physical parameter values of LDF gives a temperature increase of $4.2^\circ C$, which is close to that observed in our experiment or in our simulations. Note that this value does not depend on either the plate thickness nor the sorption isotherm (the amount of water gained by the sample during adsorption). This might be surprising but was confirmed by relevant simulations. Indeed, the thickness or the moisture buffering effect affects the global kinetics, not the value of temperature peak.

In equation (9), the impact of the heat and mass transfer coupling on the vapor flux q_v appears in the correction of RH at the sample core due to the temperature increase. When expressing this correction Δq_v as a proportion of the mass flux q_{v0} , one obtains the following ratio:

$$\frac{\Delta q_v}{q_v} = \frac{RH_{ini} \Delta T P'_{vs}/P_{vs}}{\Delta RH - RH_{ini} \Delta T P'_{vs}/P_{vs}} \quad (12)$$

Combining equation (12) with equations (10) leads to :

$$\frac{\Delta q_v}{q_v} = N_c \quad (13)$$

Where N_c , the coupling number, is a dimensionless number allowing the intensity of heat and mass transfer coupling to be quantified. Its reads as the product of three factors: i) the material properties, ii) the test configuration and iii) physical values :

$$N_c = \frac{\mathbf{f}}{\lambda_{eff}} \times \rho_{vs} RH_{ini} P'_{vs}/P_{vs} \times \mathbf{D}_v L_v \quad (14)$$

In equation 14, the factor $RH_{ini}P'_{vs}/P_{vs}$ accounts for the effect of temperature on vapor pressure. It involves the effect of sorption isotherm through the initial water activity value and the effect of temperature on the saturated vapor pressure. Therefore, for the same material, N_c depends on both the temperature level at which diffusion occur and the initial water activity of the product. In particular, N_c is proportional to RH_{ini} . For a test at $35^\circ C$ and an initial RH value of 20%, the order of magnitude of N_c is equal to 0.31 for LDF, 0.04 for MDF and 0.002 for wood in transverse direction. The first ratio involved in N_c confirms that the coupling is especially important for insulating materials having a large dimensionless value of vapor diffusivity. Note that the dimensionless factor is slightly underestimated as the computational simulations (Fig. 4) tells us that the temperature peak appears when the back face of the sample already gained some moisture : the factor RH_{ini} in equation (14) should then be somewhere between RH_{ini} and RH_{fin} .

6. Application

Recently, a new method was proposed to determine the mass diffusivity in unsteady-state by the inverse analysis of the RH evolution at the back face of the sample [19]. In this method, the absence of mass transfer at the opposite face is ensured by a plate of hard PVC which holds a SHT75 temperature/RH sensor. In order to mimic this experiment, yet ensuring a proper 1-D configuration, the experimental device described in section 2.1 was used with a non-symmetrical configuration. One single 20-mm thick LDF plate was joined with a 15-mm thick plate of hard PVC, the temperature/RH sensor being placed at the interface between the two plates. In this case, the plane between the two plates is no longer a plane of symmetry: the absence of mass flux is ensured by the impervious PVC plate, but heat transfer can occur. The heat and mass coupling is therefore quite different from the symmetrical configuration presented in figures 2 and 3. One part of the heat produced by condensation can now be evacuated through the PVC plate, reducing the temperature increase. In turn, this gradient of water vapor through the LDF plate is larger, which increases the mass flux. Compared to the symmetrical configuration, the experimental temperature peak is therefore dramatically reduced (Fig. 8) and the RH evolution significantly faster (Fig. 7).

On these figures, the simulations performed assuming a perfect symmetrical configuration with the f value previously identified (blue solid lines in figures 8 and 7), confirm the important effect of heat transfer at the back face of the sample. In order to consider this effect, an equivalent heat transfer coefficient was added to the simulation. This modified boundary condition assumes the PVC plate to be at steady state regarding heat transfer. This is reasonable as the characteristic time for thermal diffusion inside the PVC plate is smaller than the characteristic time of the coupled transfers in the LDF sample. This equivalent heat transfer coefficient $h_{back\ equivalent}$ was computed as two thermal resistances placed in series :

- the convective heat transfer coefficient between the PVC plate and the ambient, assumed to be equal to 15 W.K^{-1}
- the conduction in the 15-mm PVC plate ($\lambda_{PVC} \simeq 0.2\text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ [34])

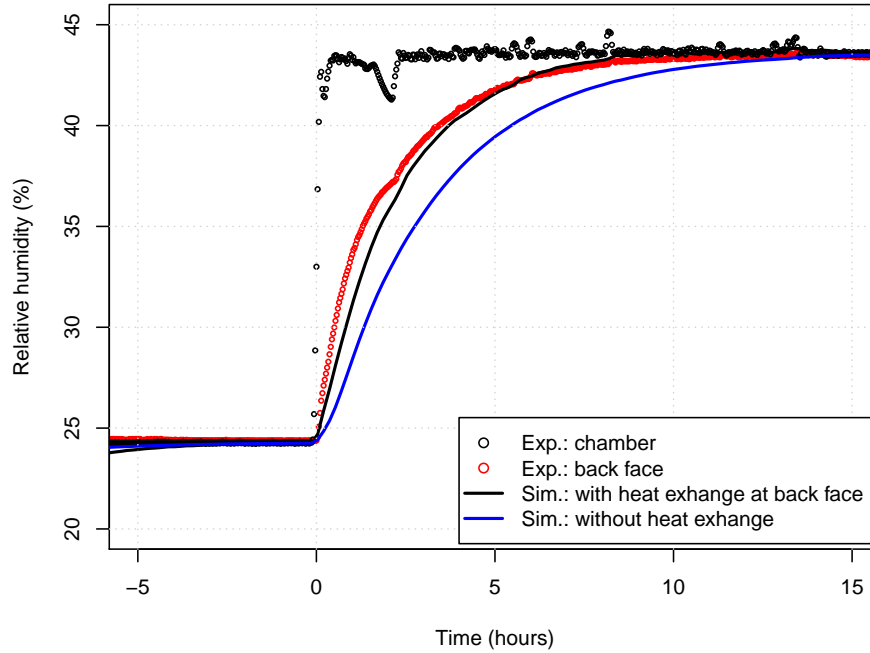


Figure 7: Experimental and simulated RH evolutions for a single plate (20 mm) of LDF (160 kg.m^{-3}) placed over a plate of PVC.

Thus, the value $h_{back\ equivalent} = 7.1 \text{ W.K}^{-1}$ was used for a new simulation (black solid lines in figures 8 and 7). The simulated results are now in very good agreement with the measurements. We can just notice a slight difference at short times just because the thermal inertia of the PVC plate is not considered in the modified boundary condition. The experimental temperature peak is therefore lower than the simulated value during the two first hours. This explains also the slightly higher experimental RH values at short times, due to the effect of temperature on the saturated vapor pressure. The good agreement found on both the RH and temperature evolution, without any fitted parameter, proves the relevance of the physical model and its prediction potential.

7. Conclusion

Based on experimental data obtained using an original set-up and relevant simulations performed using a comprehensive physical formulation, a throughout vision of the heat mass transfer in Low Density Fiberboards is proposed in the present study. In particular, we emphasize on:

- The impressive change in core temperature in terms of magnitude and duration,
- The great impact of the internal temperature gradient, which slows down mass diffusion,
- The dramatic error on mass diffusivity value if the coupling is ignored,

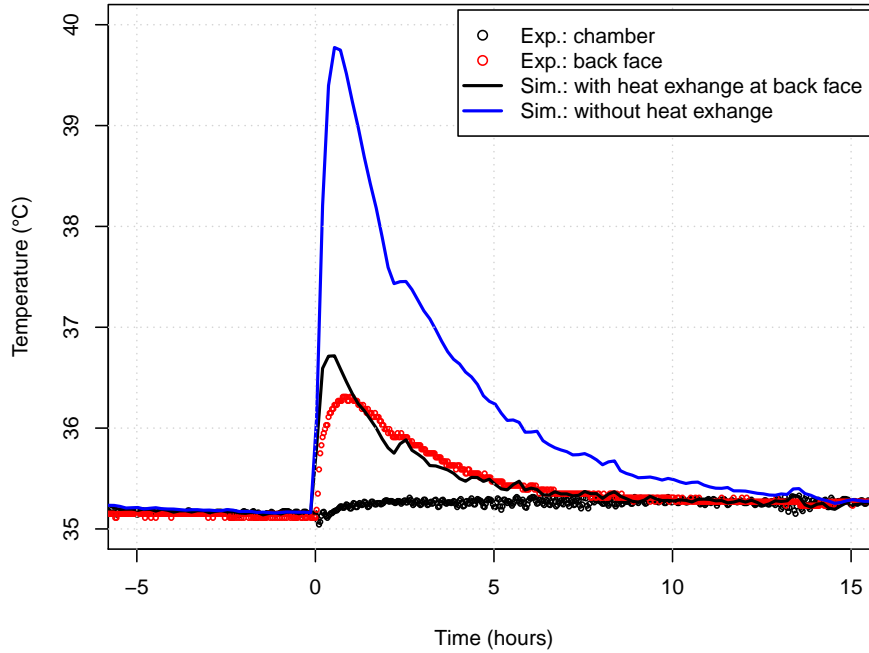


Figure 8: Experimental and simulated temperature evolutions for a single plate (20 mm) of LDF (160 kg.m^{-3}) placed over a plate of PVC.

- The possibility to perfectly account for this coupling by using a relevant physical formulation.

A dimensionless number N_c was derived to quantify the intensity of this coupling. Even though this number depends on the physical configuration, the most important factor is the ratio of mass over thermal diffusivity. The strong coupling between these phenomena forces us to be very careful when determining the unknown parameters by inverse analysis. To gain in robustness, several physical parameters must be measured during experiments in transient state. Besides, additional parameter values, such as thermal conductivity, could be determined by inverse method.

Notations

The main notation are summarized in tables (2 to 4)

References

- [1] D. B. Crawley, L. K. Lawrie, F. C. Winkelmann, W. F. Buhl, Y. J. Huang, C. O. Pedersen, R. K. Strand, R. J. Liesen, D. E. Fisher, M. J. Witte, et al., Energyplus: creating a new-generation building energy simulation program, *Energy and buildings* 33 (2001) 319–331.

Table 2: List symbols (Latin letters)

Symbol	Name	Unit
a_w	sorption isotherm (water activity)	-
c	molar concentration	$mol.m^{-1}$
D	diffusion tensor	$m^2.s^{-1}$
f	dimensionless diffusion factor	-
h	specific enthalpy	$J.kg^{-1}$
h	heat transfer coefficient	$W.m^{-2}.K^{-1}$
E	activation energy of Arrhenius law	$J.mol^{-1}$
J_k	diffusive flux of component k	$kg.m^{-2}.s^{-1}$
J_q	heat flux	$W.m^{-2}$
K	intrinsic permeability	m^2
k	relative permeability	-
k	mass transfer coefficient	$m.s^{-1}$
L_v	specific enthalpy of evaporation	$J.kg^{-1}$
M	molar mass	$kg.mol^{-1}$
Nc	dimensionless coupling number	-
n	normal unit vector	-
p or P	pressure	Pa
q_k	diffusive flux of component k	$kg.m^{-2}.s^{-1}$
q_h	heat flux	$W.m^{-2}$
R	gas constant	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
T	temperature	$^{\circ}C$
v	general velocity vector	$m.s^{-1}$
X	solid moisture content (dry basis)	-

Table 3: List of symbols (Greek letters)

Symbol	Name	Unit
ε	volume fraction	-
λ	thermal conductivity	$W.m^{-1}.K^{-1}$
μ	vapor resistance ratio	-
ρ	density	$kg.m^{-3}$
∂	partial derivative	-
ψ	gravitational potential	s^{-2}
∇	gradient	-
$\nabla \cdot$	divergence	-
ω	mass fraction	-

Table 4: Subscripts and superscripts

Subscripts	Meaning
a	air
b	bound water
eff	effective property
g	relative to the gaseous phase
L	at the back face of the sample
s	solid
v	water vapor
vs	saturated water vapor
w	liquide water
∞	at large distance from interface

Superscript	Meaning
$\overline{\psi}$	averaged of variable ψ over the REV
$\overline{\psi}^\ell$	intrinsic average of ψ over phase ℓ

- [2] M. Woloszyn, C. Rode, Tools for performance simulation of heat, air and moisture conditions of whole buildings, in: *Building Simulation*, Vol. 1, Springer, 2008, pp. 5–24.
- [3] J. Delgado, N. M. Ramos, E. Barreira, V. De Freitas, A critical review of hygrothermal models used in porous building materials, *Journal of Porous Media* 13 (2010) 221–234.
- [4] O. F. Osanyintola, P. Talukdar, C. J. Simonson, Effect of initial conditions, boundary conditions and thickness on the moisture buffering capacity of spruce plywood, *Energy and Buildings* 38 (2006) 1283–1292. doi:10.1016/j.enbuild.2006.03.024.
- [5] M. Zhang, M. Qin, C. Rode, Z. Chen, Moisture buffering phenomenon and its impact on building energy consumption, *Applied Thermal Engineering* 124 (2017) 337–345. doi:10.1016/j.applthermaleng.2017.05.173.
- [6] H. Rafidiarison, R. Rémond, E. Mougél, Dataset for validating 1-D heat and mass transfer models within building walls with hygroscopic materials, *Building and Environment* 89 (2015) 356–368. doi:10.1016/j.buildenv.2015.03.008.
- [7] H. L. Hens, Combined heat, air, moisture modelling: A look back, how, of help?, *Building and Environment* 91 (2015) 138–151. doi:10.1016/j.buildenv.2015.03.009.
- [8] C. Feng, H. Janssen, Y. Feng, Q. Meng, Hygric properties of porous building materials: Analysis of measurement repeatability and reproducibility, *Building and Environment* 85 (2015) 160–172. doi:10.1016/j.buildenv.2014.11.036.
- [9] M. Steeman, A. Janssens, H. J. Steeman, M. V. Belleghem, M. D. Paepe, On coupling 1D non-isothermal heat and mass transfer in porous materials with a multi-zone building energy simulation model, *Building and Environment* 45 (2010) 865–877. doi:10.1016/j.buildenv.2009.09.006.
- [10] G. Almeida, R. Remond, P. Perré, Evidence of Dual-Scale Diffusion Mechanisms in Low Density Fibreboards : Experiment and Multiscale Modelling, *Proceedings of the 17th International Drying Symposium (IDS'2010)*, 2010, pp. 1023–1030.
- [11] R. Rémond, G. Almeida, P. Perré, The gripped-box model: A simple and robust formulation of sorption hysteresis for lignocellulosic materials, *Construction and Building Materials* 170 (2018) 716–724.
- [12] S. Y. Yi, L. W. Fan, J. H. Fu, X. Xu, Z. T. Yu, Experimental determination of the water vapor diffusion coefficient of autoclaved aerated concrete (AAC) via a transient method: Effects of the porosity and temperature, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 103 (2016) 607–610. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.07.111.
- [13] D. Allinson, M. Hall, Hygrothermal analysis of a stabilised rammed earth test building in the UK, *Energy and Buildings* 42 (6) (2010) 845–852. doi:10.1016/j.enbuild.2009.12.005.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.enbuild.2009.12.005>

-
- [14] U. Hornung (Ed.), *Homogenization and porous media*, Springer–Verlag, New York, 1997.
- [15] P. Perré, Multiscale modelling of drying as a powerful extension of the macroscopic approach: application to solid wood and biomass processing, *Dry. Technol.* 28 (8) (2010) 944–959.
- [16] J. Crank, A theoretical investigation of the influence of molecular relaxation and internal stress on diffusion in polymers, *Journal of Polymer Science* 11 (2) (1953) 151–168.
- [17] L. Wadsö, Describing non-Fickian water-vapour sorption in wood, *Journal of Materials Science* 29 (1994) 2367–2372. doi:10.1007/BF00363428.
- [18] W. Olek, R. Romain, J. Weres, P. Perré, Non-fickian moisture diffusion in thermally modified beech wood analyzed by the inverse method, *International Journal of Thermal Sciences* 109 (2016) 291–298.
- [19] P. Perré, F. Pierre, J. Casalinho, M. Ayouz, Determination of the mass diffusion coefficient based on the relative humidity measured at the back face of the sample during unsteady regimes, *Drying Technology* 33 (2015) 1068–1075.
- [20] W. Olek, P. Perré, J. Weres, Implementation of a relaxation equilibrium term in the convective boundary condition for a better representation of the transient bound water diffusion in wood, *Wood science and technology* 45 (2011) 677–691.
- [21] T. Colinart, D. Lelievre, P. Glouannec, Experimental and numerical analysis of the transient hygrothermal behavior of multilayered hemp concrete wall, *Energy and Buildings* 112 (2016) 1–11. doi:10.1016/j.enbuild.2015.11.027.
- [22] D. Lelievre, T. Colinart, P. Glouannec, Hygrothermal behavior of bio-based building materials including hysteresis effects: Experimental and numerical analyses, *Energy and Buildings* 84 (2014) 617–627. doi:10.1016/j.enbuild.2014.09.013.
- [23] B. Seng, S. Lorente, C. Magniont, Scale analysis of heat and moisture transfer through bio-based materials — Application to hemp concrete, *Energy and Buildings* 155 (2017) 546–558. doi:10.1016/j.enbuild.2017.09.026.
- [24] P. Perré, R. Remond, I. W. Turner, Comprehensive drying models based on volume averaging: Background, application and perspective, in: E. Tsotsas, A. S. Mujumdar (Eds.), *Drying Technology: Computational Tools at Different Scales*, Vol. 1, Wiley-VCH, 2007.
- [25] P. Perré, I. W. Turner, A 3D version of Transpore: a comprehensive heat and mass transfer computational model for simulating the drying of porous media, *International Journal for Heat and Mass Transfer* 42 (1999) 4501–4521.
- [26] P. Perré, Coupled heat and mass transfer in lignocellulosic materials : a macroscopic formulation with non-Fickian effects suitable for Building Energy Simulation Tools, Submitted.

- [27] M. Louërat, M. Ayouz, P. Perré, Heat and moisture diffusion in spruce and wood panels computed from 3-d morphologies using the lattice boltzmann method, *International Journal of Thermal Sciences* 130 (2018) 471–483.
- [28] A. Hailwood, S. Horrobin, Absorption of water by polymers: analysis in terms of a simple model, *Trans. Faraday Soc.* 42B (1946) 84–102.
- [29] G. Almeida, R. Rémond, P. Perré, Hygroscopic behaviour of lignocellulosic materials: Dataset at oscillating relative humidity variations, *Journal of Building Engineering* 170 (2018) 716–724.
- [30] W. Ai, H. Duval, F. Pierre, P. Perré, A novel device to measure gaseous permeability over a wide range of pressures: characterisation of slip flow for Norway spruce, European beech, and wood-based materials, *Holzforschung* 71 (2) (2017) 147–162. doi:10.1515/hf-2015-0264.
URL <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01523306>
- [31] O. Vololonirina, M. Coutand, B. Perrin, Characterization of hygrothermal properties of wood-based products - Impact of moisture content and temperature, *Construction and Building Materials* 63 (2014) 223–233. doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014.
- [32] R. Rémond, G. Almeida, Mass diffusivity of low-density fibreboard determined under steady- and unsteady-state conditions : Evidence of dual-scale mechanisms in the diffusion, *Wood Material Science & Engineering* 6 (2011) 23–33. doi:10.1080/17480272.2010.515035.
- [33] P. Perré, The proper use of mass diffusion equations in drying modeling: Introducing the drying intensity number, *Drying Technology* 33 (2015) 1949–1962.
- [34] G. DeCarvalho, E. Frollini, W. N. DosSantos, Thermal conductivity of polymers by hot-wire method, *Journal of Applied Polymer Science* 62 (1996) 2281–2285. doi:10.1002/(SICI)1097-4628(19961226)62:13<2281::AID-APP12>3.3.CO;2-T.

Chapitre 4

Détermination de la diffusivité massique de différents matériaux de construction basée sur l'analyse inverse de l'évolution de l'humidité relative en face arrière

4.1 Introduction

La prise en compte des transferts couplés chaleur/masse dans les logiciels de simulations du comportement énergétique des bâtiments nécessite de caractériser le comportement hygrothermique des matériaux utilisés. Il faut en effet disposer de paramètres tels que la conductivité thermique, l'isotherme de sorption ou la diffusivité à la vapeur d'eau. Ce chapitre présente une campagne expérimentale de détermination de ce dernier paramètre sur différents matériaux de construction en utilisant une nouvelle méthode récemment développée dans notre laboratoire.

Celle-ci consiste à soumettre un échantillon à une variation de l'humidité relative ambiante sur sa face avant en conditions isothermes et à enregistrer l'évolution de cette même grandeur sur sa face arrière. Les données recueillies sont alors utilisées dans une procédure inverse afin d'identifier la diffusivité massique. L'un des paramètres d'entrée de cette procédure étant l'isotherme de sorption, celle-ci est également déterminée expérimentalement.

La procédure d'identification est appliquée à des matériaux ayant des caractéristiques hygroscopiques contrastées : béton cellulaire, plâtre, panneau de fibres de densités moyenne et faible ainsi que deux essences de bois massifs. La méthode donne

des résultats satisfaisants pour les divers échantillons. L'application développée au chapitre 3 est ici utilisée pour le panneau de fibres de faible densité.

Par ailleurs, des paramètres géométriques tels que la tortuosité sont déterminés par tomographie. Ces paramètres sont comparés avec ceux obtenus théoriquement à partir des valeurs de diffusivité massique. Il apparaît que la tortuosité géométrique seule ne permet pas de prédire correctement la diffusivité de tout les matériaux.

Ce travail a été publié dans **Construction and Building Materials** le 30 Décembre 2018.

Mass diffusivity determination of various building materials based on inverse analysis of relative humidity evolution at the back face of a sample

A. Challansonnex^a, F. Pierre^a, J. Casalinho^a, P. Lv^{a,b}, P. Perré^{a,b}

^a*LGPM, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, 8-10 rue Joliot-Curie, 91 190 Gif-sur-Yvette, France*

^b*LGPM, CentraleSupélec, Centre Européen de Biotechnologie et de Bioéconomie (CEBB), 3 rue des Rouges Terres, 51 110 Pomacle, France*

Abstract

In this study, we use a novel method to determine the mass diffusion coefficients of hygroscopic materials. The experiment involves subjecting one face of the sample to relative humidity (RH) variations over time and measuring the RH at the back face. The imposed RH and temperature are measured during the experiment, and they are used as boundary conditions in a comprehensive computational code to address heat and mass transfer in porous media. This new method is utilized to characterize the following building materials: autoclave aerated concrete, plaster, poplar wood, pine wood, medium-density fiberboard and low-density fiberboard. This paper provides the details regarding the determination of the sorption isotherms of the selected materials that are required for the determination of mass diffusivity. The obtained electrical tortuosity values are compared with geometrical tortuosity values determined via microtomography and three-dimensional image processing. The agreement between the two tortuosity values is applicable only for porous media with narrow pore size distribution.

Keywords: Non-Fickian diffusion, renewable materials, coupled transfer, experiment

1. Introduction

In Europe, building sectors constitute the largest energy consumption. To limit this consumption, designers currently use models that can predict and monitor the thermal performance of constructions with high accuracy. These models highlight the strong influence of coupled heat and mass transfer on energy consumption [1]. This is particularly true for renewable materials that generally exhibit a high moisture buffering effect [2]. Consequently, building energy simulation (BES) models must consider coupled heat and mass transfer, thereby resulting in a crucial demand for mass transfer characterization and measurement of mass diffusivity and sorption isotherms [3] of typically used building materials.

The mass diffusion coefficient is often determined in a steady-state regime for building materials by using the so-called cup method [4, 5]. However, because of the alternation between day and night, building materials are often in a transient state, that is, their behaviors can change significantly. Hence, a new method to determine the mass diffusion

coefficient of a hygroscopic material in an unsteady regime was proposed recently [6]. The principle is to subject one face of a sample to RH variations in time and to measure the RH on the back face of the sample. The experimental data are subsequently analyzed via inverse analysis by using a comprehensive physical model that considers the coupled transfer and the effect of gaseous phase pressure. The relevance of this method was discussed in [6] and offers several advantages such as simulation simplicity and efficiency. The most demanding component of material characterization is the determination of the sorption isotherms that are necessary as input data for the physical model. Note that these sorption isotherms are also required for BES [7].

This back-face method was used to characterize a set of contrasted building materials. Particularly, it was verified to be effective for both mineral- and lignocellulosic-based materials despite their diverse hygroscopic behavior.

Furthermore, to gain a better understanding of the obtained values, we employed a three-dimensional (3D) analysis of the material microstructures by using μ -CT scans. This procedure aims to extract geometric parameters such as tortuosity and void fraction to achieve a more acute analysis of the diffusion behavior.

2. Materials and methods

2.1. Materials

The building materials tested in this study are autoclaved aerated concrete (AAC), plaster board with the cardboard layer removed, medium-density fiberboard (MDF), low-density fiberboard (LDF), and two wood species, i.e., maritime pine (*Pinus pinaster*) and poplar (*Populus euroAmericana Koster*). AAC is a lightweight cellular concrete used for structure and insulation and generally manufactured from a mixture of finely ground silica sands, Portland cement, lime and water. The addition of aluminum powder before putting it in the oven developed its cellular character [8]. Plasterboard is a panel made of gypsum plaster generally used in the construction of interior walls. MDF is a material constituted of wood fibers, urea-formaldehyde resin and paraffin wax [9] formed as panel by applying high temperature and pressure. It is mostly used in interior design and decoration. LDF is an insulation material made of wood fibers agglomerated by their bonding properties [10]. Those four materials were purchased in building materials store, so their manufacturing conditions and compositions are not known precisely but one can assume that they are standard. Concerning wood, the maritime pine tree was cut at Leiria (Portugal) and its average ring width was 1.6 mm. The poplar tree was cut at Reims (France) and its average tree ring width was 14 mm. These wood species were both oriented in the tangential direction. Both mineral and lignocellulosic materials were studied to obtain a large diversity of hygroscopic behavior. In each material, two disk-shaped samples with a diameter of 72 mm were cut to duplicate the experimental data (Fig.1). The mean thickness and density of these samples are presented in Table. 1. Note that the basic wood density (oven-dry mass over green volume) was determined for the wood samples. Small parallelepiped-shaped samples were cut to determine the sorption isotherms, and small cylinders of ~ 5 mm diameter were chosen for the tomography. Additional details related to the sampling and measurement protocols can be found in [6, 11].

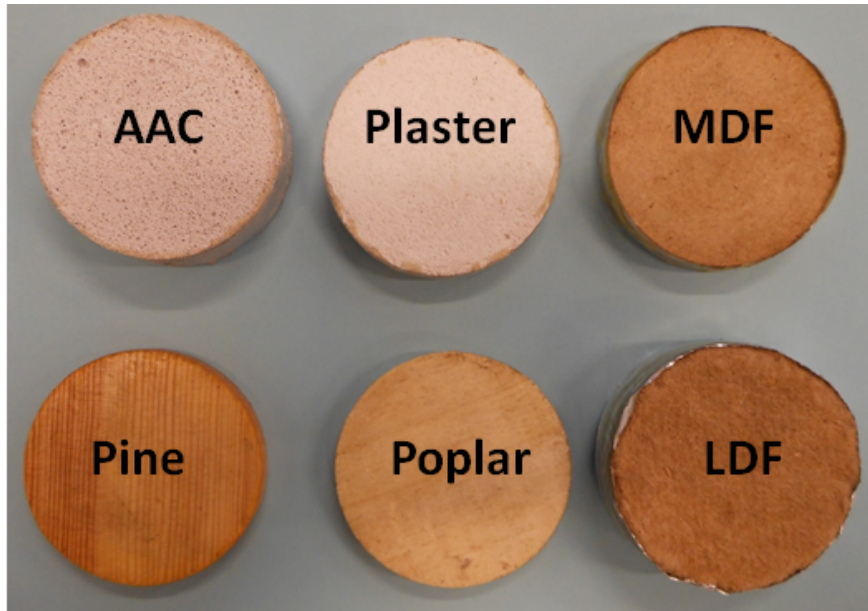


Figure 1: Photo of the disk-shape samples of different materials

Materials	Density (kg/m^{-3})	Thickness (mm)
AAC	664	20.0
Plaster	941	10.5
MDF	633	10.0
LDF	231	19.0
Maritime pine	319	9.0
Poplar	311	8.5

Table 1: Average density and thickness of the disk-shape samples. For poplar and maritime pine, the density value is the basic wood density

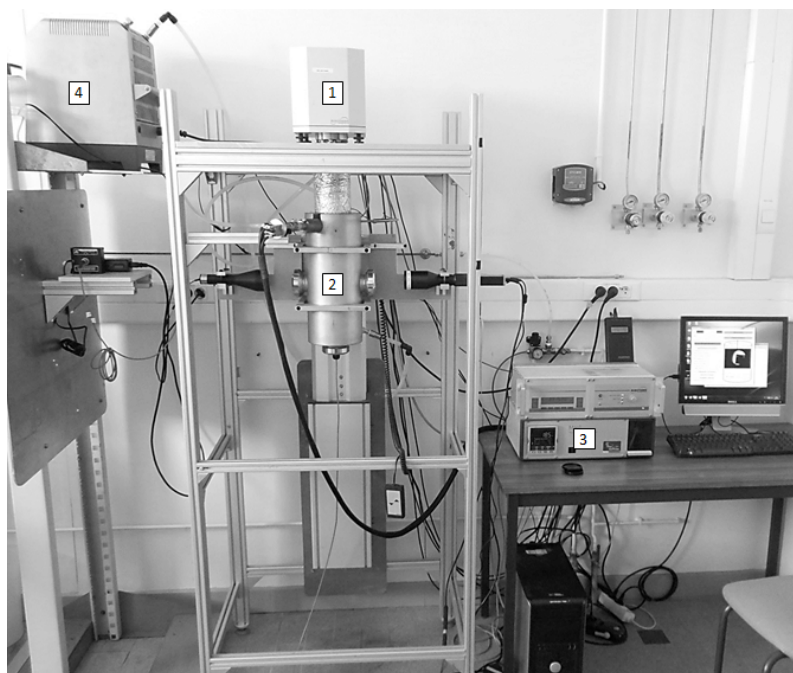


Figure 2: Sorption isotherm device with 1-magnetic suspension balance, 2-heating jacket enclosing the measuring chamber, 3-humidity generator, and 4-chiller for temperature control.

2.2. Measurement of sorption isotherms

The experimental setup (Fig. 2) was designed and developed in our laboratory at CentraleSupélec. It is based on a magnetic suspension balance (*Rubotherm-10- μ g-MSB*). The process involves subjecting the sample to a sudden step of RH under isothermal conditions. The use of magnetic suspension ensures that the mass variation of the sample is measured over time at a resolution of 0.01 mg and allows a regular tarring that avoids any balance drift. All together, we obtain an excellent reproducibility (± 0.02 mg). Because the electronic component is isolated from the sample chamber, tough conditions regarding the RH and temperature values can be obtained without any condensation or leakage problems. Additional information regarding this experimental setup can be found in [12].

As the products may exhibit a hysteresis behavior, both sorption and desorption were investigated. The tests were performed stepwise from 15% RH up to 75% RH with increments of 15% RH at 35°C for the sorption. The same protocol was applied for the desorption from 75% RH down to 15% RH. The oven-dry mass of each sample was determined after the experiment. Hence, the lignocellulosic products were oven dried at 103°C ($\pm 2^\circ\text{C}$) until reaching its equilibrium. The mineral materials were subjected to a flow of dry air at 35°C (dew point of -30°C) inside the sample chamber until reaching its equilibrium to avoid the possible volatilization of chemicals.

2.3. Measurement of mass diffusivity

The measurement principle involves subjecting one face of the sample to RH variations and measuring the RH evolution on the back face. Hence, the samples are placed in an in-house sample holder (Fig. 3(b)) that ensures a one-dimensional transfer along the



Figure 3: General view of the experimental device (left) and (b) sample holders inside the chamber (right).

thickness. Several supports are placed inside the climatic chamber (Fig. 3(a)) that imposes a sudden change in RH under isothermal conditions. At the back face of the sample, a sensor assesses the evolution of the RH and temperature. In this study, an RH step from 40% to 60% was applied at 35°C. Additional information on this device and protocol can be found in [6].

2.4. Tomography

The measurements were performed using the EasyTom XL 150/160 nanotomograph (Fig. 4(a)), manufactured by RX-solutions (Annecy, France). The device is composed of two X-ray sources (a sealed microfocus tube and an open nanofocus tube), and two imagers (an amorphous silicon matrix plan (ASMP) detector of 1920×1536 pixels and a charge coupled device (CCD) detector of 2004×1336 pixels). The samples were cylindrical with a diameter of ~ 5 mm (Fig. 4(b)). The scans presented were performed using the nano-X-ray source and CCD detector. The chosen voxel size varies from $6 \mu\text{m}$ for plaster to $0.3 \mu\text{m}$ for poplar. The corresponding acquisition time varies from 2 to 10 images/s. Hence, the scanning time ranges from 10 s to ~ 10 h depending on the spatial resolution and attenuation factor of the sample. The image reconstruction, performed on a server with four graphic process unit (GPU) cards (NVIDIA GTX1080), requires ~ 2 min.

3. Data analysis

3.1. Sorption isotherms

The sorption data are used as input parameters for the heat and mass transfer computational code. The average value between sorption and desorption was also considered. As reported in [7], using this value is a good approximation. The experimental data were

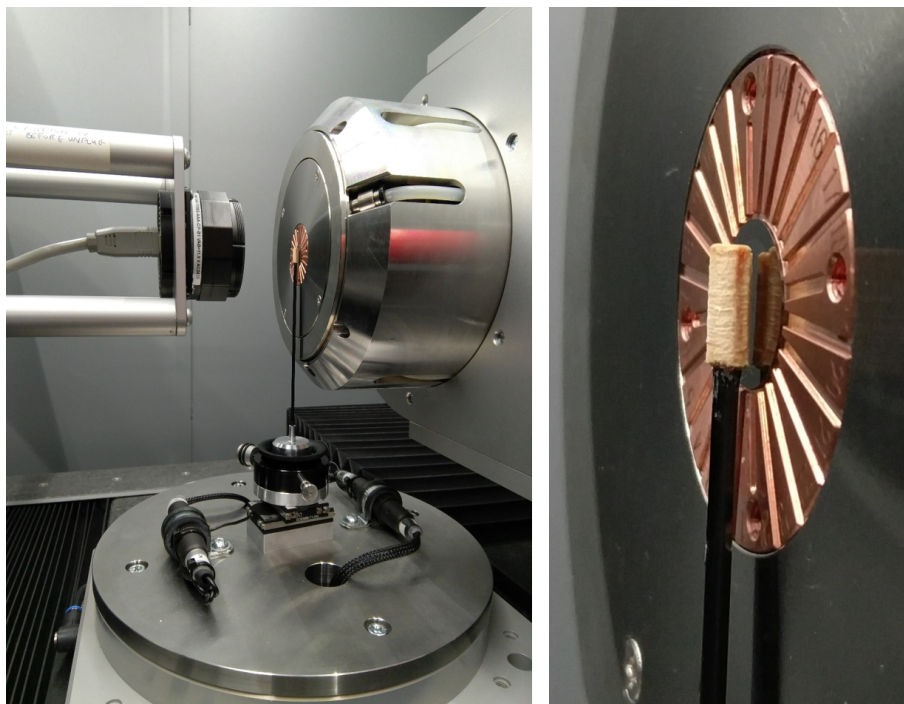


Figure 4: (a) Nanotomography apparatus (EasyTom XL Ultra 150-160) with 1-CCD detector , 2-nano-X-ray source, and 3-support with a sample at the top (left). Fig. 4(b) zoom on the maritime pine sample (right).

fitted using the Guggenheim–Anderson–de Boer (GAB) model (1) because it can fit the entire curve for a wide range of materials [13, 14].

$$X = X_{12} \cdot C \cdot K \cdot RH / ((1 - K \cdot RH) \cdot (1 + (C - 1) \cdot K \cdot RH)), \quad (1)$$

where X is the moisture content and RH is the relative humidity (both dimensionless).

The three model parameters were determined using the Levenberg–Marquardt least-squares method [15, 16]. The starting point for the coefficients was manually chosen to approach the experimental values. The two convergence criteria are the step size and the value change of the objective function.

3.2. Mass diffusivity

The mass diffusivity is determined using an inverse method. Note that although the determination of the sorption isotherms is relatively straightforward, the procedure for predicting the mass diffusivity is more sophisticated. The method is described as follows:

1. The physical model involves a comprehensive formulation of coupled heat and mass transfer equations and the associated computational algorithm [17, 18].
2. The actual conditions imposed at the front face of the sample are used as boundary conditions in the computational model.

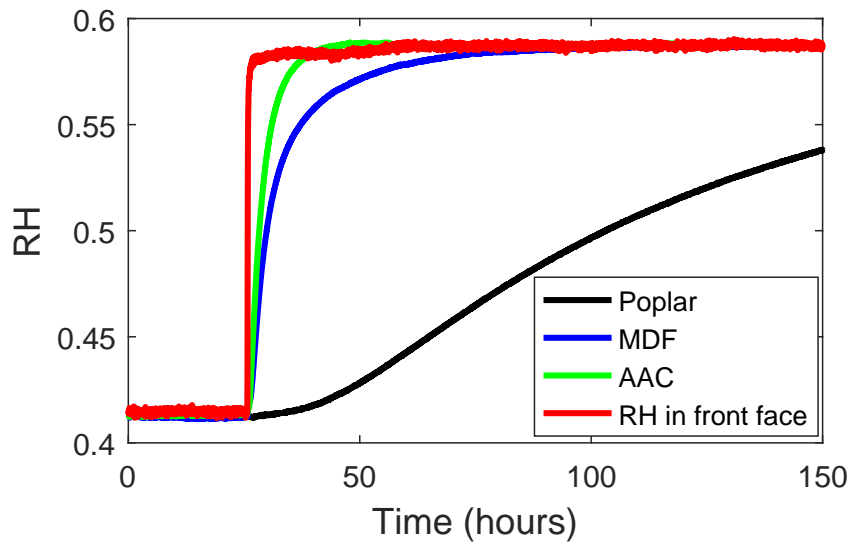


Figure 5: Example of the evolution of the RH value at the back face of the sample, exhibiting a significant difference in the time constant among various materials.

3. The mass diffusivity is computed by minimizing an objective function, that is, the mean-square difference between the recorded RH value at the back face of the sample and the value predicted by the model.

The sample characteristics (e.g., thickness, density, porosity, and sorption isotherm) are the input parameters of the model. To ensure that the minimization procedure will accurately work, several unknown parameters must be identified (e.g., diffusivity, external heat transfer coefficient, and shift between RH sensors and initial moisture content). These parameters allow the objective function to be minimized correctly, although the actual goal of the minimization procedure is to determine the mass diffusivity. Examples of the experimental data can be observed in Fig. 5. Additional information on the physical model and this inverse analysis are discussed in [6].

Several materials exhibit an extremely low diffusivity and thus require a long time to reach their equilibrium. For example, poplar required more than 400 h before it can be considered to have reached its equilibrium. Table. 2 presents the reduced diffusivity obtained for maritime pine when using only one part of the experimental data, that is, 50, 150, 300, and 500 h, after the step in RH (500 h corresponding to the entire experiment). The error on the mass diffusivity was determined using the full dataset as a reference value. When using only the first 50 h after the RH step, the error is only 7.5%, which is remarkable because this duration is only 10% of the full experiment. This result confirmed that this back-face method can characterize the mass diffusivity even when the sample is far from its equilibrium. However, the entire experimental information was used in the present work for identification.

identification time	50 h	150 h	300 h	500 h
reduced mass diffusivity ($\times 10^2$)	0.4606	0.4179	0.4088	0.4284
relative error	7.5 %	2.4%	4.5%	0%

Table 2: Identified values of the reduced diffusivity and corresponding relative error obtained for poplar when the identification used a subset of the experimental data, limited to a certain time after the step in RH.

3.3. Geometric tortuosity and void fraction

The stacks of reconstructed slices obtained via CT scan are preprocessed using the *Avizo* software. First, the slices are cropped to exclude the borders to reduce the calculation time. Second, thresholding is applied using the “interactive thresholding” function available in *Avizo*. Considering that only two phases are present (i.e., material and void space), a binary image is obtained. Finally, a “median filter” and/or a “filter by measure” are applied to reduce the noise. Fig. 6 depicts the six reconstructed material microstructures after image processing.

The void fraction (or porosity) is obtained by dividing the number of voxels allocated to the void by the total number of voxels. The geometric tortuosity τ_g is defined [18] as the ratio of the average length $\langle L_g \rangle$ of the geometric paths through the medium over the straight line length, L_s , across the medium (> 1).

$$\tau_g = \frac{\langle L_g \rangle}{L_s} \quad (2)$$

The method proposed in [19] was used to determine the geometric tortuosity. To calculate the geometric tortuosity in a given direction, the shortest distance L_g between a source plane and all voxels representing the void for each plane [20] is calculated. Hence, the *propagation distance* function available in *Avizo* uses the chessboard algorithm. As shown in Fig. 7(a), this function returns a volume representing the pore network where the intensity of each voxel is inversely proportional to the number of voxels constituting the shortest path to the source plane, which is the definition of L_g . The mean value of L_g for each plane is calculated, and the tortuosity τ_g is the slope of the linear fit between $\langle L_g \rangle$ and the Euclidian distance to the source plane L_s (Fig. 7(b)). We observed that the intercept of the curve is nonzero because, for the first planes, the acquired geometry is not yet representative of the material and is not well fitted via linear regression.

4. Results and discussion

Sorption isotherms and diffusion coefficients

Fig. 8 depicts the six sorption isotherms. For a better presentation and because of the wide range of equilibrium moisture content values, a logarithmic scale is used for the plot. The markers are the experimental points and the lines represent the fitted GAB model. The corresponding parameters are summarized in Table. 3. As expected, the lignocellulosic materials are highly hygroscopic, whereas the mineral-based materials exhibit a very small hygroscopic domain (up to 20 times smaller). Note that maritime pine, poplar, MDF, and LDF exhibit very similar sorption isotherm curves because the secondary cell wall of lignocellulosic fibers has a similar macromolecular composition. Apparently, the glues

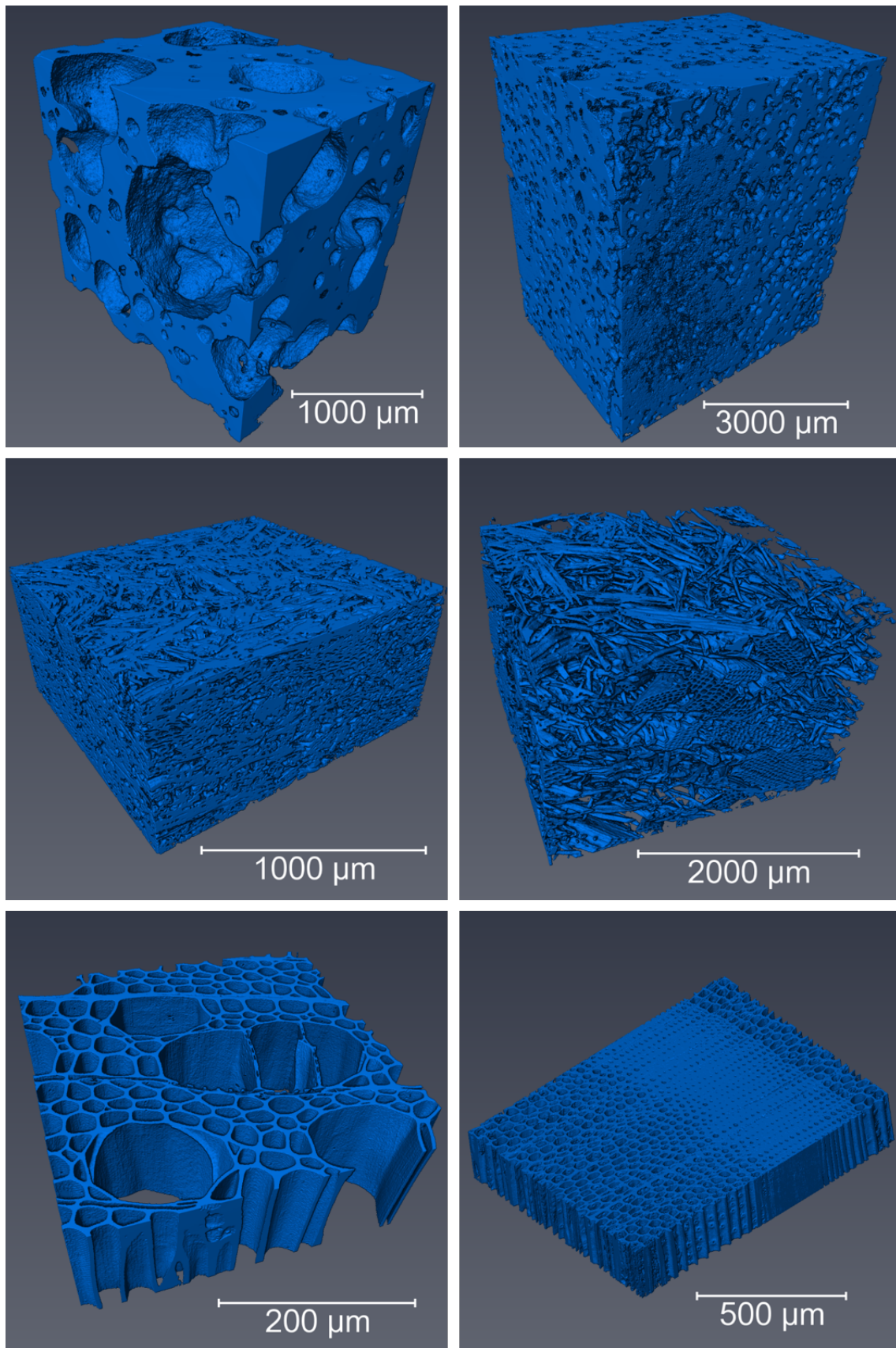


Figure 6: From left to right and up to down: AAC, plaster, MDF, LDF, poplar, and maritime pine reconstructed microstructure after thresholding.

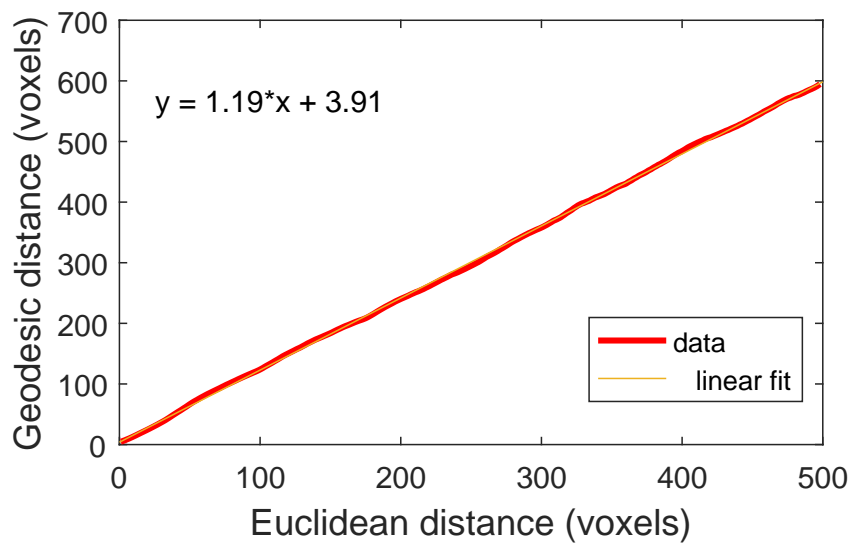
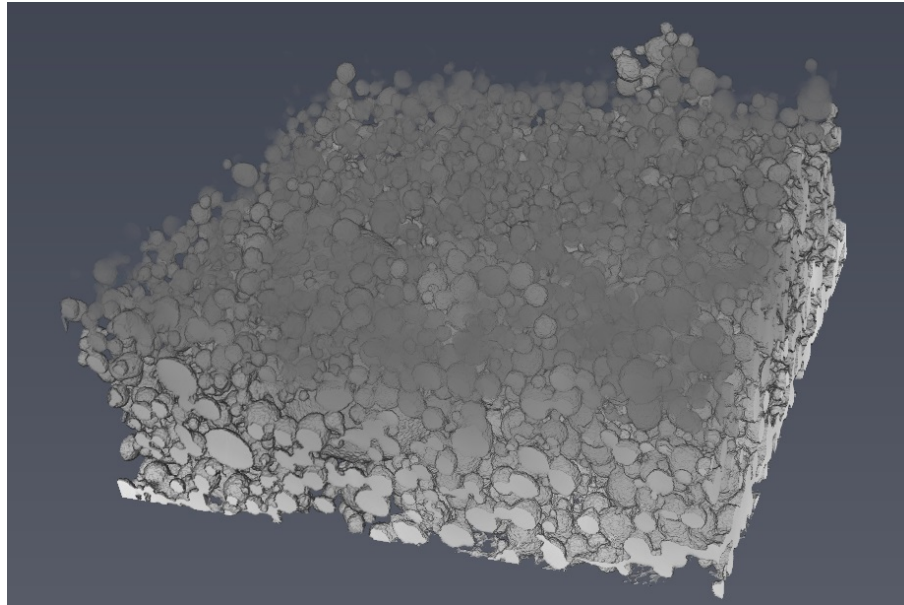


Figure 7: (a) Plaster volume rendering of the propagation distance function the source plane being at the bottom plane (top image). (b) Determination of the geometric tortuosity of plaster using the slope of the curve (bottom image).

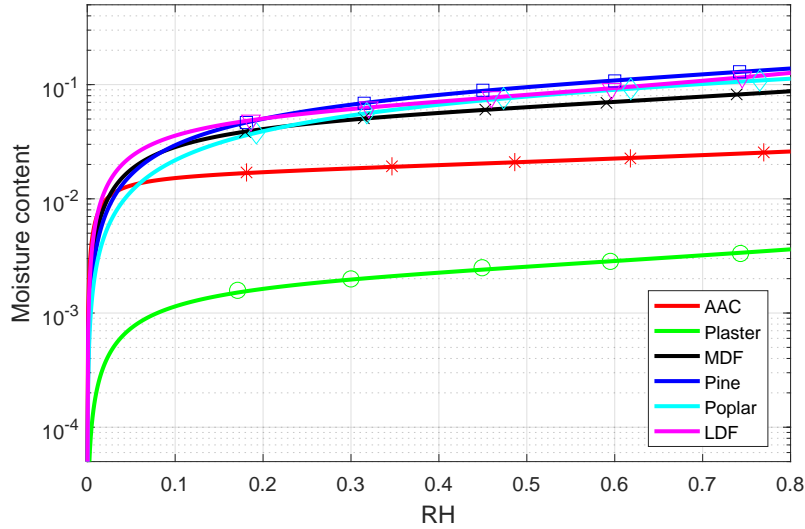


Figure 8: Different isotherms identified using the GAB model.

exhibit no major effect on the MDF hygroscopic behavior, as reported in [21] for a similar resin. By comparing with the literature, the values for plaster resemble closely the one found for the “PMP plaster” in [22], with a moisture content value of $\sim 0.3\%$ against 0.2% at 70% RH. The value for AAC is higher and of the same order of magnitude compared with that reported in [23] (with a moisture content value of $\sim 2.5\%$ against 6% at 70% RH). Regarding the MDF, the values are almost similar to that reported in [9], with both values of $\sim 6\%$ at 50% RH. With regard to the LDF, the obtained values appear slightly higher than that reported in [24], with a value of $\sim 10.5\%$ against 9.5% at 70% RH. These values obtained for the two wood species are in the typical range for wood [25].

The identified values of the dimensionless diffusivity f confirm the wide range of the time evolution behavior observed on raw results (Fig. 5). The lowest values were obtained for the wood in the tangential direction (~ 0.003 for the maritime pine and 0.005 for the poplar). AAC and MDF exhibit similar dimensionless diffusivity of approximately 0.1 , thereby implying that water vapor diffuses 10 times slower in these materials than in an air layer. Finally, plaster presents an average value close to 0.6 , which is a large value, and vapor diffusion is 60% of the diffusion in the same layer of air at rest.

The results obtained for AAC are in good agreement with that in the literature. For instance, in [26], an average value of 0.15 was reported (against 0.094 in this study). The residue found after identification was extremely low (~ 0.0002). The same was observed for plaster, with an average value of 0.56 against 0.18 in [5], as well as low residue (~ 0.0004). However, the mineral materials can exhibit vastly different values depending on their manufacturing conditions. Regarding the poplar, the values are approximately twice lower than that in [27]. However, in the previous work, transfer occurred in the radial direction. Nevertheless, the mass diffusivity of the wood is typically larger in the radial direction owing to the presence of rays composed of cells whose length is along the radial direction. Regarding the maritime pine, the average value of 0.0025 is close to that reported in

[28]. With regard to the MDF, the value is similar with its determination from its actual morphology by using an upscaling method in [29] (0.091 versus 0.14).

Regarding the LDF which is very diffusive and hygroscopic but has a low thermal conductivity, the coupling between heat and mass transfer is exacerbated. Indeed, after the perturbation in ambient RH, condensation heats up the front face of the material. In turn, this temperature rise increases the vapor pressure as it is the product of water activity by the saturated vapor pressure. The coupling between heat and mass allows this process to propagate toward the back face. Because of the increase of the vapor pressure, the external driving force is reduced and the transfer is slowed down. This phenomenon is carefully analyzed in a recent work by the authors [30]. In particular, it is shown that for this kind of material, poor consideration of coupling generates dramatic error in the identified value of the diffusive coefficient. Thus if one ignores the heat flux that is generated by the contact with the impervious disk (made of PVC) at the back face of the sample, the model underestimates the speed of the transfer. Consequently, it overestimates the value of f . To fix this problem, an equivalent heat transfer coefficient at the back face of the sample was estimated in [30]. Using this new boundary condition, the identified values for f are 0.57 and 0.61. If the heat flux was not considered, the identified values would be higher than the unit as it was the case in our previous study [6]. This value was nonphysical because a simple layer of air at rest should exhibit a value of 1.

The values obtained were then compared to the ones found in steady state with the traditional cup method performed on sample 2 for each material. This classical method is used widely to obtain the diffusive coefficient in a steady state. First, a cup is filled with salt solution that imposes a known RH value at a certain temperature. Then, the top of the cup is enclosed with a sample of the material, and the cup is placed in a climatic chamber. The created RH gradient gives rise to a mass flux that will result in a modification of the mass of the cup, which is weighed regularly. The evolution of the mass can be linked to the diffusion coefficient. These values are depicted in the last column of Table. 3. Interestingly, both methods yield similar results except for LDF and plaster. Concerning LDF, this observation is possibly owing to the dual-scale character of mass diffusion which was reported for this material in [31]. Indeed, the LDF comprised of one well-connected and diffusive phase for the gas and one poorly and weakly diffusive phase for the fibers. In the unsteady state, the interaction between a macroscopic time constant linked with diffusion in the gas and a microscopic time constant linked with diffusion in the fibers may explain this phenomenon because the second value would be greater than the first. Consequently, the physical model attempts to compensate for this effect by increasing the diffusion coefficient. Although no similar observation was reported in literature for plaster, the difference between transient and steady states is also apparently important, implying that a dual-scale diffusion may also occur in this material.

Morphological parameters

The porosity and geometric tortuosity that were obtained by performing a 3D image processing on the CT scans are summarized in Table. 4. In the table, the fourth column refers to the electrical tortuosity τ_d calculated using the transient diffusivity (the value used is the average between the two samples). This parameter is defined by the effective diffusivity of the phenomenon of interest, that is, the mass diffusivity in the present work [32, 33, 34]. In previous studies, the tortuosity is defined as a square ratio; thus, square

Materials	Sorption isotherms			Reduced transient diffusivity f		Reduced steady-state Diffusivity f (for sample 2)
	Parameters of G.A.B. model			Sample 1	Sample 2	
	X_{12}	C	K			
AAC	16.59×10^{-3}	143	46.11×10^{-2}	0.095	0.091	0.094
Plaster	1.986×10^{-3}	19.26	58.48×10^{-2}	0.67	0.46	0.33
MDF	49.69×10^{-3}	13.54	55.24×10^{-2}	0.090	0.095	0.097
LDF	58.93×10^{-3}	17.34	69.42×10^{-2}	0.57	0.61	0.46
Maritime pine (Tangential)	101.2×10^{-3}	7.37	49.34×10^{-2}	0.0027	0.0028	0.0032
Poplar (Tangential)	110.1×10^{-3}	6.12	36.82×10^{-2}	0.0042	0.0065	0.0067

Table 3: Material dataset determined in the present work for mass diffusivity

Materials	Porosity (ε)	Geometric tortuosity (τ_g)	Electrical tortuosity (τ_e)
AAC	0.51	1.23	2.34
Plaster	0.41	1.19	1.11*
MDF	0.41	1.14	2.09
LDF	0.79	1.05	1.31*
Maritime Pine (tangential)	0.52	1.42	13.81
Poplar (tangential)	0.79	1.09	12.20

Table 4: Porosity and geometric tortuosity values obtained via a 3D analysis and electrical tortuosity values obtained via the transient diffusive coefficient. (*Value obtained using the steady-state regime coefficient)

does not appear in the denominator of relation (3). To maintain the coherence between the definitions of geometric and electrical tortuosity, we modified this relation as follows:

$$f = \frac{\varepsilon}{\tau_e^2}, \quad (3)$$

where ε is the porosity, τ_e is the electrical tortuosity, and f is the reduced mass diffusion coefficient.

The obtained porosity values refer to the pores with size larger than the CT scan resolution. Given that the scan resolution has been adapted to the material, we assume that the porosity values in Table. 4 refer to the macroscopic, connected porosity. Note that one part of the closed porosity can be included in the case of wood fiber panels, namely, the lumens in large particles containing several intact fibers, without collapse. This porosity is possibly a good morphological description of the porous medium regarding transfer and is used in (3) to compute the electrical tortuosity.

The electrical tortuosity values depicted in Table. 4 are strongly dependent on the material. A large value is obtained for the wood in the tangential direction (both pine and poplar), whereas a value of ~ 2 is gained for AAC and MDF. Because of the presumed dual-

scale character of diffusion in LDF and plaster, the values of diffusion obtained in steady state were used, and that obtained via transient diffusion was irrelevant. Noticeably, the materials that are more diffusive exhibit values closer to the theoretical bound of 1.

On the contrary, the geometrical tortuosity determined by a 3D image processing presents similar results, i.e., slightly greater than the unit regardless of the product. If the obtained values seem reasonable for AAC, plaster, and MDF, they should be extremely small for the wood in tangential direction. Indeed, owing to the elongated shape of the cells in the longitudinal direction, a significantly longer pathway is required to progress along the radial or tangential direction than in the longitudinal direction [25]. We believe that the algorithm employed in Avizo validates any pathway as soon as one pathway between small pits is determined. Therefore, it would not consider any constriction effect. This result can explain why the geometrical tortuosity is not a representative of the diffusion process. Neither the pathway number nor the variation in the pore sections crossed by the fluid is considered when determining the geometrical factor, although they are important morphological parameters involved in diffusion.

Lorenz [35] demonstrated that the geometric tortuosity is always inferior to the electrical tortuosity ($\tau_g < \tau_e$). For AAC and MDF, the two coefficients are of the same order of magnitude with ($\tau_g < \tau_e$), which is in good agreement with the theory. For the plaster, the electrical tortuosity is smaller than the geometrical value. This result indicates that solid phase contributes to moisture transfer, possibly through the submicro porosity of this solid phase [36]. For the two wood species in the tangential direction, the electrical tortuosity is, by far, larger than the geometrical value. The large variation in the pore sections crossed by the fluid is an additional explanation of the longer pathway in these materials. Given that the fluid must cross the pits and lumens whose sections are different by several orders of magnitude, a constrictivity coefficient should be added to relation (3) [37]. Similar to Dullien [38], the tortuosity definition that directly contains constrictivity was proposed. Thus, relation (3) is only relevant when the porosity is homogeneous, which is the case of the three other materials.

Fig. 9 depicts the results obtained for the geometric and diffusive tortuosity on the same graph in a log-log scale. The poor correlation confirms that the simple geometrical factor cannot capture the physical diffusion in porous media.

5. Conclusion

In this study, we exploited a novel method to determine the mass diffusion coefficient in a dynamic regime by using the RH evolution at the back face of the sample. The pore morphology of these materials was characterized using microtomography and 3D image processing. Various building materials have been characterized. The conclusions of the study are as follows:

1. The new method performed well for the materials with diverse hygroscopic behaviors.
2. A comprehensive dataset of material properties was proposed for five building materials, likely to be used in predictive models to monitor the thermal performance of constructions.

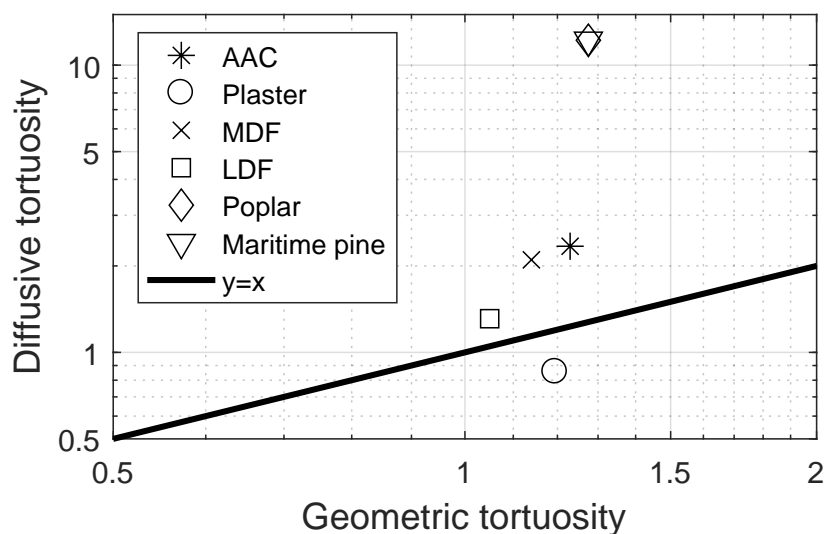


Figure 9: Comparison between diffusive and geometric tortuosities on a log-log scale graph.

3. The determination of the mass diffusion coefficient was possible at much shorter times than the time required to reach its equilibrium, which is a major advantage for slow diffusive materials.
4. The geometric parameters obtained via the 3D analysis were consistent with the diffusive properties that were identified only for materials with homogeneous porosity.

Acknowledgment

The authors acknowledge the 3D-BioMat project that is co-financed by the Grand Reims (31%) and the European Union (48.7%) (i.e., 50% of the eligible expenditure). Europe is committed to the Grand Est with the European Regional Development Fund. The 3D-BioMat project (with a total budget of 965,000) is hosted by the Centre Européen de Biotechnologie et de Bioéconomie (CEBB 51110 Pomacle, France) for a 3-year period (from 01/05/2016 to 30/04/2019).

“Declaration of interest: none”

References

- [1] J. Delgado, N. M. M. Ramos, E. Barreira, V. P. De Freitas, A critical review of hygrothermal models used in porous building materials, *Journal of Porous Media* 13 (3) (2010) 221–234.
- [2] A. Piot, M. Woloszyn, J. Brau, C. Abele, Experimental wooden frame house for the validation of whole building heat and moisture transfer numerical models, *Energy and Buildings* 43 (6) (2011) 1322–1328. doi:10.1016/j.enbuild.2011.01.008.
URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S037877881100017X>
- [3] M. Steeman, A. Janssens, H. J. Steeman, M. V. Bellegem, M. D. Paepe, On coupling 1D non-isothermal heat and mass transfer in porous materials with a multizone

- building energy simulation model, *Building and Environment* 45 (4) (2010) 865–877. doi:10.1016/j.buildenv.2009.09.006. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.buildenv.2009.09.006>
- [4] A. Tarmian, R. Remond, H. Dashti, P. Perré, Moisture diffusion coefficient of reaction woods: Compression wood of *Picea abies* L. and tension wood of *Fagus sylvatica* L., *Wood Science and Technology* 46 (1-3) (2012) 405–417. doi:10.1007/s00226-011-0413-3.
- [5] H. S. L. C. Hens, The vapor diffusion resistance and air permeance of masonry and roofing systems, *Building and Environment* 41 (2006) 745–755. doi:10.1016/j.buildenv.2005.03.004.
- [6] P. Perré, F. Pierre, J. Casalinho, M. Ayouz, Determination of the Mass Diffusion Coefficient Based on the Relative Humidity Measured at the Back Face of the Sample during Unsteady Regimes, *Drying Technology* 33:9 (2015) 1068–1075. doi:10.1080/07373937.2014.982253.
- [7] J. Kwiatkowski, M. Woloszyn, J.-J. Roux, Modelling of hysteresis influence on mass transfer in building materials, *Building and Environment* 44 (2009) 633–642. doi:10.1016/j.buildenv.2008.05.006.
- [8] I. Ioannou, A. Hamilton, C. Hall, Capillary absorption of water and n-decane by autoclaved aerated concrete, *Cement and Concrete Research* 38 (6) (2008) 766–771. doi:10.1016/j.cemconres.2008.01.013.
- [9] S. Ganev, R. Beauregard, G. Gendron, Effect of pannel moisture content and density on moisture movement in MDF, *Wood and Fiber Science* 35 (1) (2003) 68–82.
- [10] O. Suchsland, G. E. Woodson, *Fiberboard manufacturing Practices In the United States*, U.S. Government printing office, 1986.
- [11] P. Perré, A. C. Houngan, P. Jacquin, Mass Diffusivity of Beech Determined in Unsteady- State Using a Magnetic Suspension Balance, *Drying Technology* 25 (7-8) (2007) 1341–1347. doi:10.1080/07373930701438923.
- [12] G. Almeida, J. P. Lancha, F. Pierre, J. Casalinho, P. Perré, Physical behavior of highly deformable products during convective drying assessed by a new experimental device, *Drying Technology* 35 (8) (2017) 906–917. doi:10.1080/07373937.2016.1233883.
- [13] M. Simo-tagne, Y. Rogaume, Sorption behavior of four tropical woods using a dynamic vapor sorption standard analysis system, *Maderas. Ciencia y tecnología* 18 (3) (2016) 403–412. doi:10.4067/S0718-221X2016005000036.
- [14] M. Ben Abdelhamid, D. Mihoubi, J. Sghaier, A. Bellagi, Water Sorption Isotherms and Thermodynamic Characteristics of Hardened Cement Paste and Mortar, *Transport in Porous Media* 113 (2) (2016) 283–301. doi:10.1007/s11242-016-0694-y.

- [15] K. Levenberg, A Method for the Solution of Certain Non-Linear Problems in Least Squares, *Quarterly of Applied Mathematics* 2 (278) (1944) 164–168. doi:10.1090/qam/10666. URL <http://www.ams.org/journals/qam/1944-02-02/S0033-569X-1944-10666-0/S0033-569X-1944>
- [16] D. W. Marquardt, An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters, *Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics* 11 (2) (1963) 431–441.
- [17] P. Perré, I. W. Turner, A 3-D version of TransPore: a comprehensive heat and mass transfer computational model for simulating the drying of porous media, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 42 (24) (1999) 4501–4521. doi:10.1016/S0017-9310(99)00098-8. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931099000988>
- [18] P. Perré, The Proper Use of Mass Diffusion Equations in Drying Modeling : Introducing the Drying Intensity Number, *Drying Technology* 33 (15-16) (2015) 1949–1962. doi:10.1080/07373937.2015.1076836. URL <http://dx.doi.org/10.1080/07373937.2015.1076836>
- [19] C. J. Gommers, S. Blacher, J. H. Dunsmuir, A. H. Tsou, Practical Methods for Measuring the Tortuosity of Porous Materials from Binary or Gray-Tone Tomographic Reconstructions 55 (8) (2012) 2000–2012. doi:10.1002/aic.
- [20] A. Hunt, B. Ghanbarian, M. Sahimi, Tortuosity in Porous Media: A Critical Review, *Soil Science Society of America Journal* 77 (2013) 1461–1477. doi:10.2136/sssaj2012.0435.
- [21] A. Derkowski, R. Mirski, J. Majka, Determination of Sorption Isotherms of Scots Pine (*Pinus Sylvestris* L .) Wood Strands Loaded With Melamine-Urea-Phenol- Formaldehyde (Mupf) Resin, *Wood Research* 60 (2) (2015) 201–210.
- [22] M. Karoglou, A. Moropoulou, M. K. Krokida, Z. B. Maroulis, A powerful simulator for moisture transfer in buildings, *Building and Environment* 42 (2) (2007) 902–912. doi:10.1016/j.buildenv.2005.10.008.
- [23] K. Kielsgaard Hansen, Sorption isotherms: A Catalogue, Tech. rep., Technical University of Denmark : Building Materials Laboratory (1986).
- [24] O. Vololonirina, M. Coutand, B. Perrin, Characterization of hygrothermal properties of wood-based products - Impact of moisture content and temperature, *Construction and Building Materials* 63 (2014) 223–233. doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014>
- [25] J. Siau, *Transport Processes in Wood*, Springer-Verlag, 1984.
- [26] R. Cern, Effect of moisture content on heat and moisture transport and storage properties of thermal insulation materials, *Energy and Buildings* 53 (2012) 39–46. doi:10.1016/j.enbuild.2012.07.002.

- [27] P. Rousset, P. Perré, P. Girard, Modification of mass transfer properties in poplar wood (*P. robusta*) by a thermal treatment at high temperature, *Holz Roh Werkst* 62 (2) (2004) 113–119. doi:10.1007/s00107-003-0459-5.
- [28] E. Agoua, P. Perre, Mass transfer in wood: Identification of structural parameters from diffusivity and permeability measurements, *Journal of Porous Media* 13 (11) (2010) 1017–1024.
- [29] M. Louërat, M. Ayouz, P. Perré, Heat and moisture diffusion in spruce and wood panels computed from 3-D morphologies using the Lattice Boltzmann method, *International Journal of Thermal Sciences* 130 (2018) 471–483. doi:10.1016/j.ijthermalsci.2018.05.009.
URL <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2018.05.009>
- [30] P. Perré, A. Challansonnex, J. Colin, On the importance of heat and mass transfer coupling for the characterization of hygroscopic insulation materials, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 133 (2019) 968–975.
- [31] G. Almeida, R. Remond, P. Perré, Evidence of Dual-Scale Diffusion Mechanisms in Low Density Fibreboards : Experiment and Multiscale Modelling, in: *International Drying Symposium, Magdeburg*, 2010.
- [32] J. A. Currie, W. R. Harper, D. A. Rose, Gaseous diffusion in porous media. Part 2. - Dry granular materials, *Journal of Applied Physics* 11 (1960) 318–324.
- [33] N. Epstein, On tortuosity and the tortuosity factor in flow and diffusion through porous media, *Chemical Engineering Science* 44 (1989) 777–779.
- [34] D. Hillel, *Introduction to environmental soil physics*, academic press Edition, Elsevier, 2004.
- [35] P. Lorenz, Tortuosity in Porous Media, *Nature* 189 (1961) 386–387.
- [36] S. Gutiérrez-gonzález, J. Gadea, A. Rodríguez, M. T. Blanco-varela, V. Calderón, Compatibility between gypsum and polyamide powder waste to produce lightweight plaster with enhanced thermal properties, *Construction and Building Materials* 34 (2012) 179–185. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.02.061.
- [37] J. Van Brakel, P. M. Heertjes, Analysis of diffusion in macroporous media in terms of a porosity , a tortuosity and a constrictivity factor, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 17 (1974) 1093–1103.
- [38] F. Dullien, Prediction of “tortuosity factors” from pore structure data, *AICHE Journal* 21 (4) (1975) 820–822.

Chapitre 5

Détermination expérimentale des fonctions mémoires sur des échantillons de petite taille

5.1 Introduction

La configuration particulière des matériaux hygroscopiques fortement diffusifs à la vapeur d'eau tels que les panneaux de fibres ou le bois de résineux en direction longitudinale aboutit à des situations de non-équilibre local. En effet, en régime transitoire le temps de diffusion microscopique à l'intérieur des fibres est du même ordre de grandeur, voir supérieur au temps de diffusion macroscopique dans la phase gazeuse. Une nouvelle formulation permettant de prendre en compte ces phénomènes a récemment été proposée (détaillée en annexe A). Celle-ci se base sur l'utilisation de fonctions mémoires qui caractérisent le comportement diffusif microscopique du matériau. Cette formulation a été implémentée dans le code *Transpore*.

Ce chapitre propose une identification de ces fonctions mémoires sur des panneaux de fibres de faible et moyenne densité, ainsi que sur de l'épicéa en direction longitudinale. Pour ce faire, un dispositif expérimental conçu autour d'une balance à suspension magnétique est utilisé. Il permet de soumettre de petits échantillons (demi épaisseur inférieure à 1 mm) à des variations d'humidité relative tout en enregistrant leur masse. Le fait de travailler sur des petits échantillons rend les effets macroscopiques négligeables devant les effets microscopiques. Les données sont ensuite utilisées dans une procédure inverse afin d'identifier les fonctions mémoires de chacun des matériaux. Ces fonctions mémoires sont approximées par deux termes exponentiels de la forme $\alpha \exp(-\frac{t}{\tau})$. Une étude de sensibilité permet de vérifier que ces paramètres tels qu'ils sont définis sont indépendants, ce qui valide la stratégie d'identification.

Les résultats montrent qu'une fois la fonction identifiée, le modèle approche de façon excellente les données expérimentales, et ce pour les trois matériaux. Au contraire, en utilisant une formulation de transferts couplés classique, le modèle ne capture absolument pas la physique du transfert. Par ailleurs, on connaît la forme analytique de la fonction mémoire qui dépend du coefficient de diffusion microscopique. En utilisant la fonction déterminée précédemment, il est donc possible d'identifier ce coefficient.

Ce travail a été soumis dans **Construction and Building Materials** le 15 novembre 2018.

Non-Fickian diffusion in biosourced materials: Experimental determination of the memory function using minute samples

A. Challansonnex^{a,*}, J. Casalinho^a, P. Perré^{a,b}

^a*LGPM, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, 8-10 rue Joliot-Curie,
91 190 Gif-sur-Yvette, France*

^b*LGPM, CentraleSupélec, Centre Européen de Biotechnologie et de Bioéconomie (CEBB), 3 rue des
Rouges Terres, 51 110 Pomacle, France*

Abstract

Focusing on non-Fickian diffusion in biosourced materials, we have recently developed a new formulation that can model this behavior using memory functions. To identify those memory functions, an experimental device based on a magnetic suspension balance is used. Very thin samples of low-density fiberboard, medium-density fiberboard, and Spruce in the longitudinal direction are subjected to variations in ambient relative humidity (RH) while their mass is recorded. The imposed RH and temperature are used as boundary conditions in a comprehensive model to solve the heat and mass transfer equations in porous media. A computational code solving the new formulation was used to determine the memory functions by inverse analysis. The use of very thin samples enables macroscopic parameters to be considered as negligible compared to microscopic effects.

Keywords: Non-Fickian diffusive behavior, renewable materials, coupled transfer, experiment

1. Introduction

In the past few decades, an interest in the conception of buildings more respectful of the environment has emerged. In particular, biosourced materials offer good performances with a reduced ecological footprint. The determination of their thermal and hygroscopic characteristics is of great interest to properly modeling the energetic characteristics of buildings [1, 2]. However, in fibrous materials such as fiberboards, a non-Fickian diffusive behavior has been observed. This may lead to several consequences in transient modes such as a dependence of the mass diffusive coefficient on material thickness [3]. We also suspect the delay between relative humidity (RH) and moisture content that is observed in [4] to be due to this phenomenon. More generally, it has been shown that a classical formulation of coupled heat and mass transfer is unable to model the behavior of those materials [5]. This kind of behavior is due to the dual-scale nature of the material that leads to an absence of thermodynamic equilibrium [6, 7, 8, 9]. Indeed, a fiberboard panel comprises two phases with contrasting characteristics, as represented in Fig. 1(a): 1. a

*Corresponding author

Email address: arnaud.challansonnex@centralesupelec.fr (A. Challansonnex)

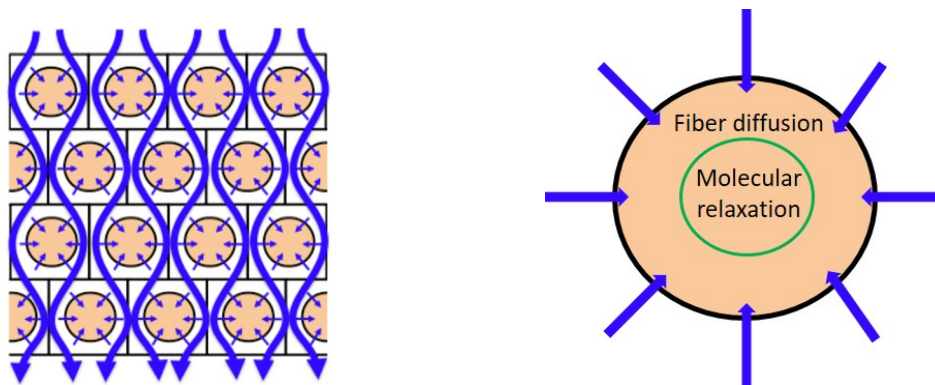


Figure 1: From left to right: (a) Schematic presenting the diffusion in a material composed of two phases with contrasted diffusivity; (b) schematic presenting the diffusion inside a fiber, with two distinct phenomena

gaseous phase, which is highly diffusive and well connected, and 2. the fibers themselves, which are weakly diffusive and poorly connected. Therefore, two time constants interfere during transient diffusion, the macroscopic time constant linked to diffusion in the gaseous phase and a microscopic time constant linked to diffusion in the fibers. The microscopic time constant being superior to or even of the same order of magnitude as the other results in the absence of thermodynamic equilibrium. This kind of behavior has also been observed in the longitudinal direction of massive wood, owing to the strong vapor diffusion inside the vessels and tracheids, which in this case constitute the gaseous phase [10].

Furthermore, one part of the fibers reacts to a perturbation of ambient RH with a much longer characteristic time than the rest of it (several tens of hours instead of a few minutes). This phenomenon is known as molecular relaxation of vegetable polymers. It can be described as a rearrangement of the molecular state when a penetrant diffuses into a polymer substance [11, 12, 13, 14, 15]. The polymer molecules must take up a new configuration to accommodate the penetrant molecules. As a consequence, a long delay for the material to reach equilibrium is created when the fibers are submitted to a variation of the ambient RH [16, 17]. As a result, as represented in Fig. 1(b), diffusion in the fibers occurs in two consecutive stages. In the following text, the short-time diffusion will be referred to as *fiber diffusion* whereas the long-time diffusion will be referred to as *molecular relaxation*.

One of the main objectives of this paper is to characterize the diffusion in the fibers at the microscopic scale. Therefore, we chose to study a configuration where microscopic effects are predominant compared to macroscopic ones. This was achieved by studying diffusion in very thin samples. Indeed, in one-dimensional diffusion, the characteristic time increases as the diffusion path thickness square. As can be observed in Fig. 2, by reducing the thickness of the sample, the macroscopic characteristic time becomes negligible compared to those of both molecular relaxation and fiber diffusion.

We have recently worked on a new formulation [18] that can model these kinds of microscopic behaviors using memory functions. This formulation will be briefly presented. Those memory functions are identified using experimental results obtained with a device built around a magnetic suspension balance. Minute samples of low-density fiberboard

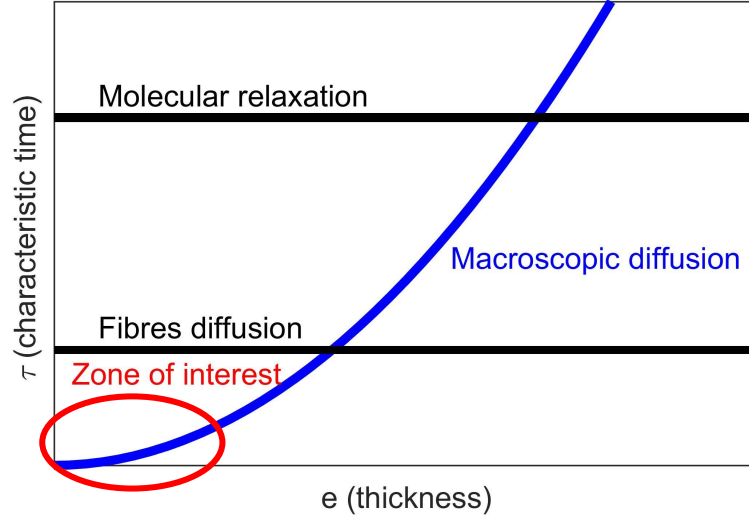


Figure 2: Drawing showing the effect of reducing the sample thickness on characteristic times

(LDF), medium-density fiberboard (MDF), and Spruce wood in the longitudinal direction were submitted to variations in ambient RH while their mass variation is measured. The data are then analyzed by using an inverse method. The model that is used is a comprehensive system of equations that takes into account the coupling between heat and mass. This system is solved using the computational code *Transpore* [19, 20], which is embedded in the optimization algorithm. The new formulation with memory effects was recently implemented in the code.

2. Materials and methods

2.1. Materials

The three materials that were studied are LDF, MDF, and Spruce wood in the longitudinal direction.

LDF is an insulation material made of wood fibers agglomerated by their bonding properties. Its thermal and hygroscopic characteristics have already been widely studied [21, 22, 23, 24]. The sample comes from a 1-cm-thick panel with a density of 255 kg/m^3 (and note that all densities were measured at 40% RH). It is produced by Steico (Munich, Germany) and contains only wood fibers. In the identification procedure, the dimensionless diffusivity coefficient (ratio of the macroscopic diffusivity coefficient of vapor in the material over the macroscopic diffusivity coefficient of vapor in air) was chosen at 0.45.

MDF is a material constituted of wood fibers, urea-formaldehyde resin, and paraffin wax [25]. The panel is formed by applying high temperature and pressure. It is mostly used in interior design and decoration. Its thermal and hygroscopic characteristics have also been widely investigated [25, 26, 5]. The material that was studied comes from a

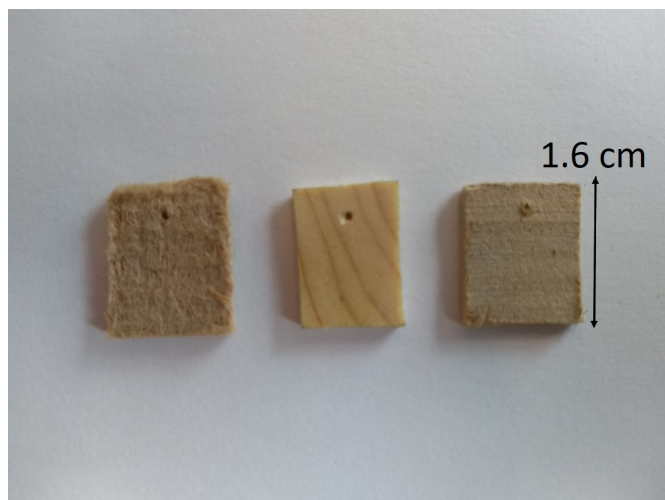


Figure 3: Photograph of the three samples, from left to right: LDF, Spruce, and MDF

1-cm-thick panel with a density of 655 kg/m^3 . Its dimensionless diffusivity coefficient was chosen at 0.075.

Spruce wood is a softwood that is commonly used in building construction and whose transport characteristics have also been investigated [27, 5]. Even if in use the mass transfer does not usually occur in the longitudinal direction, it is of great interest to observe the absence of thermodynamic equilibrium in a nonfibrous material that has not undergone any modification process. The wood that was used in this work has a density of 455 kg/m^3 . Its dimensionless diffusivity coefficient was chosen at 0.5.

Small rectangular shaped samples of 1.6 cm in length and 1.2 cm in width were cut perpendicular to the sheet plan for fiberboards and perpendicular to the board for spruce. A wire diamond saw was used to preserve the structure of the materials. A photograph of the samples can be observed in Fig. 3. The thickness of these samples was chosen to be thin enough for the microscopic effects dominate over the macroscopic effects but thick enough to maintain the macroscopic structure of the material. Therefore, LDF and Spruce samples are 1.7 mm thick and the MDF sample is 1.4 mm thick. Choosing such sample thicknesses kept the diffusive path length always $< 1 \text{ mm}$.

2.2. Experimental setup

The experimental setup is based on a suspension magnetic balance (Rubotherm-10- μg -MSB, TA Instrument, New Castle, United States). The measurement chamber is controlled in terms of RH and temperature. RH control is made via a humidity generator (MHG-32, ProUmid GmbH & Co., Ulm, Germany). The temperature is controlled with a cryothermostat (Ministat230, HUBER, Offenburg, Germany) that circulates water within a double-wall jacket that encloses the chamber. The sample is attached to a hook connected to a permanent magnet coupled to an electromagnet that is weighed by the balance. In this manner, the electronic part can be isolated from the sample room, allowing a wide range of conditions in terms of RH and temperatures to be obtained without condensation or leakage problems. The principle of the experiment is then to submit the sample to a



Figure 4: Experimental setup, showing 1: magnetic suspension balance, 2: heating jacket enclosing the measuring chamber, 3: humidity generator, and 4: cryothermostat for temperature control

sudden change in ambient RH and to record its mass variation over time at a very high resolution (0.01 mg) as well as the ambient conditions inside the chamber through the RH and temperature sensors. A regular taring offers very good reproducibility (± 0.02 mg). Note that, for this experiment, special care has been taken in the placement of the RH and temperature sensors. Indeed, because of the very subtle phenomena that are observed, the sensors had to be placed between the air inlet of the humidity generator and the sample, so that the sample does not perturb the RH being read by the sensor. A photograph of the experimental device can be observed in Fig. 4, and more details about it can be found in Ref. [28].

In the current experiment, samples were first dried using nitrogen flow. This allows us to obtain an anhydrous mass while avoiding hysteresis effects and thus ensures the reproducibility of the experiment. Then, four jumps in RH followed by a plateau were studied: from 0% to 20%, 20% to 40%, 40% to 60%, and 60% to 80%. During this experiment, the acquisition rate was set at 30 s and taring occurred every 5 min. A wide range of RH values were chosen because molecular relaxation depends on RH. Indeed, its effect is known to be stronger at high RH [29]. The plateau duration is a function of the relaxation observed. Our stopping criterion is a gain of $< 0.000012/h$ during 5 h in terms of moisture content. If this exigent criterion is not reached, the plateau is stopped after 100 h, which was the case for the highest RH (80%). All the experiments were performed under isothermal conditions at 35 °C. An example of the experimental results obtained can be observed in Fig. 5 for the first three plateaus of MDF.

2.3. *Assessing the sensor drift over long durations*

Molecular relaxation is characterized by a slow evolution of the moisture content toward equilibrium when the sample is submitted to a perturbation of the imposed RH. However, to ensure that such an observation is due to molecular relaxation, one must know very

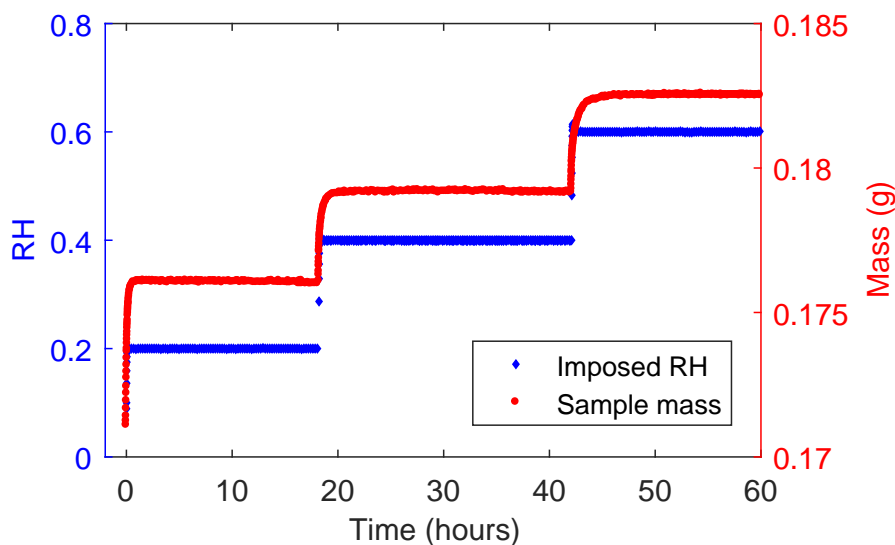


Figure 5: Evolution of sample mass and imposed RH with time for MDF during the first three plateaus

precisely the actual value of the surrounding RH. For that purpose, we performed an accurate calibration of our sensors over long durations. To do this, we used a dew point analyzer (Optidew, Michell Instruments, Lyon, France) as reference information, as the RH is obtained via the value of the dew point temperature (MHG sensor). In this kind of apparatus, the temperature is measured via a very stable Pt100 sensor. Two RH sensors were tested: a Sensirion SHT75 (HDI Electronics, Perois, France) and the regulation probe of the moist air generator. They were both placed in a climatic chamber (HPP110, Memmert, Schwabach, Germany) nearby the dew point transmitter. Then, similarly to what is done in the experiment, stepwise RH variations are imposed (20% to 40%, 40% to 60%, and 60% to 80%) under isothermal conditions (35 °C). Each step duration was chosen to last 50 h, as can be observed in Fig. 6(a). As can be observed in Fig. 6(b), for the step from 60% to 80%, the SHT75 sensor slowly drifts to its equilibrium value. This behavior disqualifies this sensor in this experiment and the RH value that is recorded in this work is then the value of the regulation probe, which presented no major differences in its kinetic behavior compared to that of the transmitter.

2.4. Measurement of the external heat transfer coefficient

Because of the very thin samples used, simulation results depend quite strongly on the external heat transfer coefficient. Fortunately, this coefficient is solely controlled by the boundary layer around the sample. It can therefore be determined in the same device from the constant drying rate period (CRP) [30, 31] using a sample of identical geometry. To ensure the existence of a CRP, the sample was made of sponge. This piece of sponge was saturated with water and then placed in the experimental device just like a sample would have been. A jump of RH from 20% to 40% was made at a temperature of 35 °C. During the CRP, the whole heat flux is used to vaporize the liquid water at the surface of the sample. Because the temperature of the surface is known to be the wet bulb temperature,

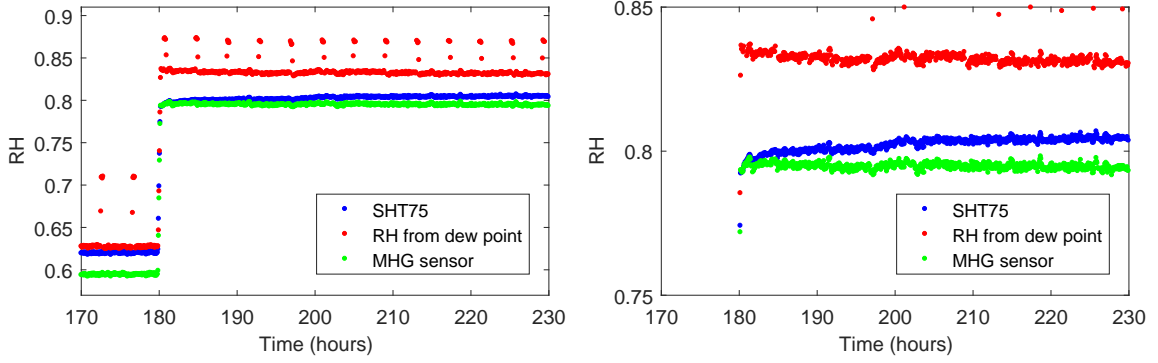


Figure 6: From left to right: (a) Experimental results for sensor testing for the 60%–80% RH jump; (b) expanded view of the RH zone of interest

by neglecting transfer at the lateral faces of the sponge, the external heat transfer coefficient h can be easily obtained by the following relation:

$$h = \frac{L_v q_v}{2S(T_d - T_w)}, \quad (1)$$

where L_v the latent heat of vaporization of water, q_v is the flux of liquid water turned into vapor, S is the surface of the faces of the sponge, T_w is the wet bulb temperature, and T_d is the dry bulb temperature. Finally, the value of h found is $20.46 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$, which is consistent with the air velocity and sample size.

3. Physical model with the new formulation

The physical model that was used in the inverse procedure is a comprehensive model that takes into account the coupling between heat and mass [19, 20]. However, because of the thinness of the samples, the coupling has no major influence on the results in this work. Therefore, we focus on the mass conservation equation, which was recently modified to take into account the absence of thermodynamic equilibrium. The principle of this modification will be briefly recalled but for a more comprehensive explanation the reader can refer to the related paper [18]. The phenomenon is modeled using a memory function. This function is defined by the reaction of the storage phase (the fibers) at a microscopic scale when submitted to a sudden change in ambient RH from RH_{ini} to RH_{fin} at t_0 . If $X(t)$ is the moisture content of the storage phase, for $t < t_0$, $X(t) = X_{ini} = X_{eq}(RH_{ini})$, where $X_{eq}(RH)$ is the equilibrium moisture content value defined by the sorption isotherm. At $t = t_0$, the boundaries of the storage phase are at equilibrium with RH_{fin} and a diffusion problem can be established inside it. Therefore, the moisture content can be expressed as follows:

$$X(t) - X_{ini} = \Delta X_{eq} \varphi(t), \quad (2)$$

where $\Delta X_{eq} = X_{eq}(RH_{fin}) - X_{eq}(RH_{ini})$ and φ is a monotonic function such that $\lim_{t \rightarrow \infty} \varphi(t) = 1$, which is the analytic solution of the microscopic diffusion problem [32, 33].

However, because generally the value of RH varies over time, a convolution product is needed:

$$X(t) - X_{ini} = \int_0^t \varphi(t - \tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau, \quad (3)$$

where

$$\frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau = dX_{eq} \quad (4)$$

represents the variation of equilibrium moisture content during the infinitesimal time interval $d\tau$.

We consider the conservation law for moisture where X_{eq} is used as a driving force. Indeed, recent experimental results [34, 19] have shown that the relevant driving force is the gradient of water vapor density:

$$\frac{\partial X(x, t)}{\partial t} + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x, t)) = 0. \quad (5)$$

By combining (3) and (5), this equation can be modified and we obtain a new equation with only X_{eq} :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\int_0^t \varphi(t - \tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau \right) + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x, t)) = 0. \quad (6)$$

Equation (6) can be solved more easily when the memory function is of the form $\varphi(t) = 1 - \sum_{i=1}^N \alpha_i \exp(-\frac{t}{\tau_i})$. Such a form allows us to implement each exponential function in the computational code as an internal variable [35, 36] that will be updated at each node of the computational domain using the evolution of dX with time. In this manner, equation 6 is embedded in the full system of heat and mass transfer macroscopic equations (three balance equations with three state variables) that is solved by the computational code.

4. Data analysis

4.1. Chosen form of the memory function

In practice, the memory function can always be approached as a sum of exponential functions. For example, it is proved in Ref. [18] that the analytical solution of diffusion into fibers (an infinite sum of exponential functions) can be, surprisingly, approached by only one or two exponential functions. In addition, it was shown in the same work that two phenomena arising at different spatial scales (molecular relaxation and diffusion inside fibers) can still nicely approach the sum of two exponential functions at the macroscopic scale, as long as the characteristic times of the two phenomena are significantly different. Subsequently, we have chosen here to define φ by the sum of two exponential functions: one for dual-scale diffusion (φ_{fd}) and one for molecular relaxation (φ_{mr}). Therefore, we have $\varphi = \varphi_{fd} + \varphi_{mr} - 1$, with $\varphi_{fd} = \alpha_{fd} \exp(-\frac{t}{\tau_{fd}})$ and $\varphi_{mr} = \alpha_{mr} \exp(-\frac{t}{\tau_{mr}})$.

4.2. *Inverse procedure*

The principle of the identification is to fuel the comprehensive code with known sample characteristics (thickness, density, porosity, diffusion coefficient, thermal conductivity, etc.) and the estimated values of unknown parameters (the parameters described earlier, α and τ , the initial moisture content, etc.) as well as the measured external heat transfer coefficient and the sorption isotherm. Note that the sorption isotherm is directly calculated from the experimental data. By using the recorded conditions of the measurement chamber (RH and temperature) as boundary conditions, the computational code is able to predict the mean moisture content of the sample. An objective function S quantifies the difference between the predicted and experimental values of the mean moisture content as a sum of the square residues. This function is of the following form:

$$S = \sum_{i=1}^N w_i [X_{exp}(t_i) - X_{pred}(t_i)]^2, \quad (7)$$

where X_{exp} is the experimental value, X_{pred} is the predicted value, t is time, N is the number of time intervals, and w_i is the weighting factor, which is proportional to the time interval (where here the time interval does not vary).

The unknown parameters are modified by an optimization algorithm (downhill Simplex [37]) that iterates to minimize the objective function. The parameters α and τ are thus obtained after convergence.

4.3. *Identification strategy and sensitivity analysis*

One of the main difficulties of this work is separating the contributions of fiber diffusion and molecular relaxation. However, because the characteristic times of the two phenomena are supposed to be very different, the effect of fiber diffusion should be predominant during the first instants after the perturbation whereas molecular relaxation should be predominant for long-time diffusion [38]. The strategy adopted will be illustrated in Fig. 7 for the case of the jump between 40% and 60% RH for LDF. In Fig. 7(a), one can observe the set of experimental data (imposed RH and sample moisture content) during the whole acquisition.

The first step consists of identifying α_{fd} and τ_{fd} over a period that lasts one hour after the RH perturbation. Therefore, one considers that during this period the only contribution is due to fiber diffusion, whose parameters are identified, while molecular relaxation parameters are set to zero. This step can be observed in Fig. 7(b). One can see that the model has a particular shape during the very first instants after the perturbation. Indeed, the curve shows an inflection point. This is due to the imposed RH that is used as a boundary for the model. Actually, one can see in Fig. 7(a) that it is not a perfect Heaviside function but that there is a slight overshoot of the targeted RH.

In the second step, α_{mr} and τ_{mr} are identified over the whole acquisition. The effects of both phenomena are considered, with the values of the fiber diffusion parameters being fixed at the values found before. This step can be observed in Fig. 7(c).

Finally, the third step consists of adjusting the parameters by identifying their four values at the same time over the whole acquisition using the values found in the first two steps as starting points. This last step can be observed in Fig. 7(d). In this figure, one

can also observe the behavior of the model if the time constants were null, that is, for a classic formulation without memory functions. In this case, the model is far too fast and does not capture the kinetics of the transfer. One can also observe that there is a slight overshoot because of the value of imposed RH. For this last step, the identified values were $\alpha_{fd} = 0.38$, $\tau_{fd} = 3.2 \times 10^3$ s, $\alpha_{mr} = 0.13$, and $\tau_{mr} = 2.6 \times 10^4$ s.

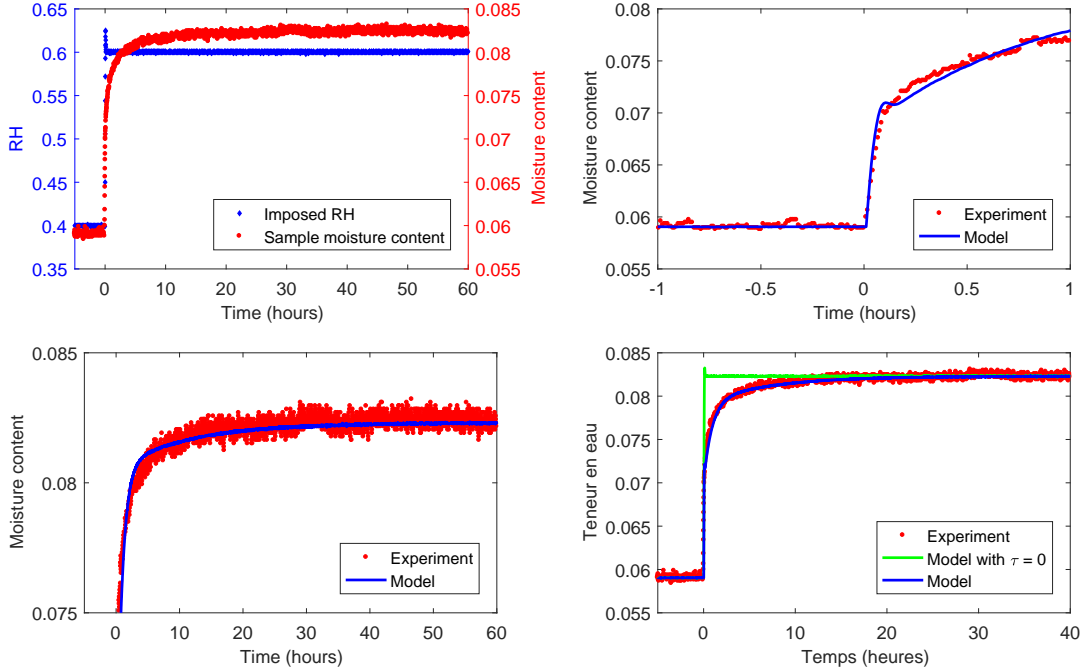


Figure 7: From left to right and top to bottom: (a) Experimental evolution of the moisture content for LDF for the 40%–60% jump % and imposed RH, (b) identification of the first exponential function at short times, (c) identification of the second exponential function at long times, and (d) final identification

To check whether the identified parameters were really independent, a sensitivity analysis was performed. For each parameter β , two consecutive simulations were done: one with parameter β fixed at its identified value ($\beta = \beta_0$) and one with $\beta = \beta_0(1 + \epsilon)$, where $\epsilon = 10^{-2}$. Other parameters were kept at their identified values. One can then obtain the profile over the whole step duration of the relative variation of the moisture content with respect to each parameter:

$$\frac{X(t)_{\beta=\beta_0(1+\epsilon)} - X(t)_{\beta=\beta_0}}{\epsilon X(t)_{\beta=\beta_0}}. \quad (8)$$

The evolution of the sensitivity coefficients over the entire range of a sorption test are presented in Fig. 8. One can note the following:

- Parameters α has a strong influence at very short times because the proportion of the storage phase that does not react with a relaxation time $(1 - \alpha_{fd} - \alpha_{mr})$ reacts immediately. Consequently, for each exponential function, the amplitude α and time constant τ affects the answer over different times scales, which proves that these coefficients are independent.

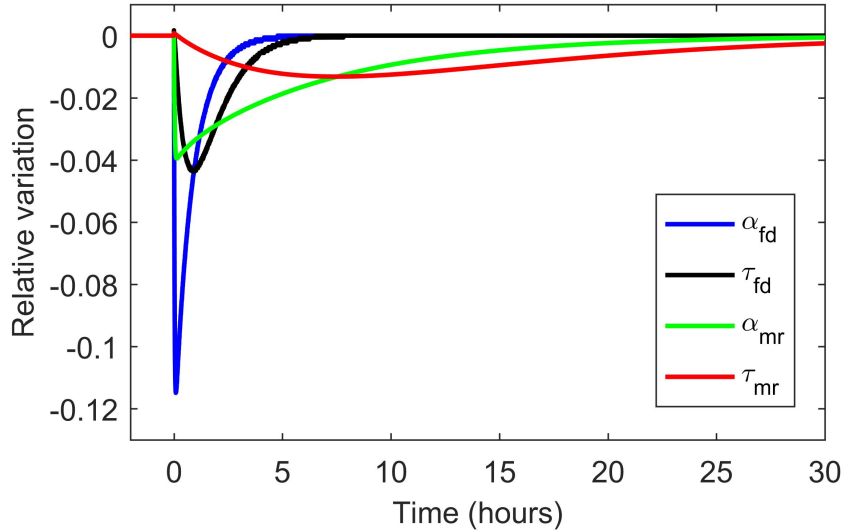


Figure 8: Sensitivity of moisture content to the identified parameters for the jump in RH from 40% to 60% for LDF

- Similarly, owing to the contrast in time constants for the two exponential functions, one can also confirm that the two sets of parameters are independent, which validates our identification strategy.

The strategy of the present work is to use minute samples to focus the experimental data on microscopic effects. To confirm this assumption, the same procedure was applied with the dimensionless diffusivity coefficient (Fig. 9). The peak of the influence of this parameter is very small (5×10^{-3}) and is reached during the first minutes after the perturbation: After 10 min, its value is already negligible. Those observations confirm what was observable in Fig. 7(d): that the dimensionless diffusivity coefficient has an influence on very short times that is not representative of the behavior of the material. This demonstrates that the influence of the macroscopic diffusivity on the identification of microscopic parameters is completely negligible.

5. Results and discussion

5.1. Identification of the memory functions

Jumps in RH (%)	α_{fd}	τ_{fd} (s)	α_{mr}	τ_{mr} (s)
0–20	0.80	1.7×10^2		
20–40	0.30	1.0×10^3	0.10	1.1×10^4
40–60	0.38	3.2×10^3	0.13	2.6×10^4
60–80	0.52	3.1×10^3	0.07	1.3×10^5

Table 1: Identified coefficients for LDF

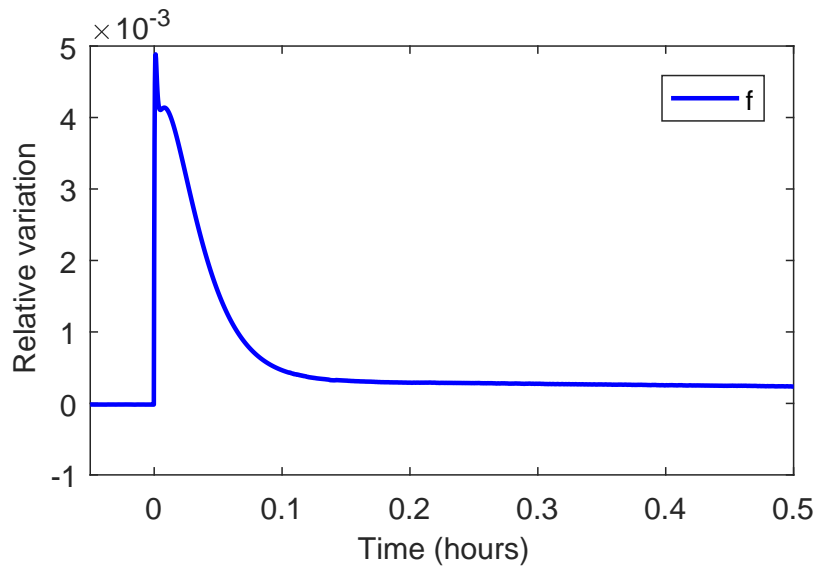


Figure 9: Sensitivity of moisture content to the macroscopic diffusive coefficient for the jump in RH from 40% to 60% for LDF

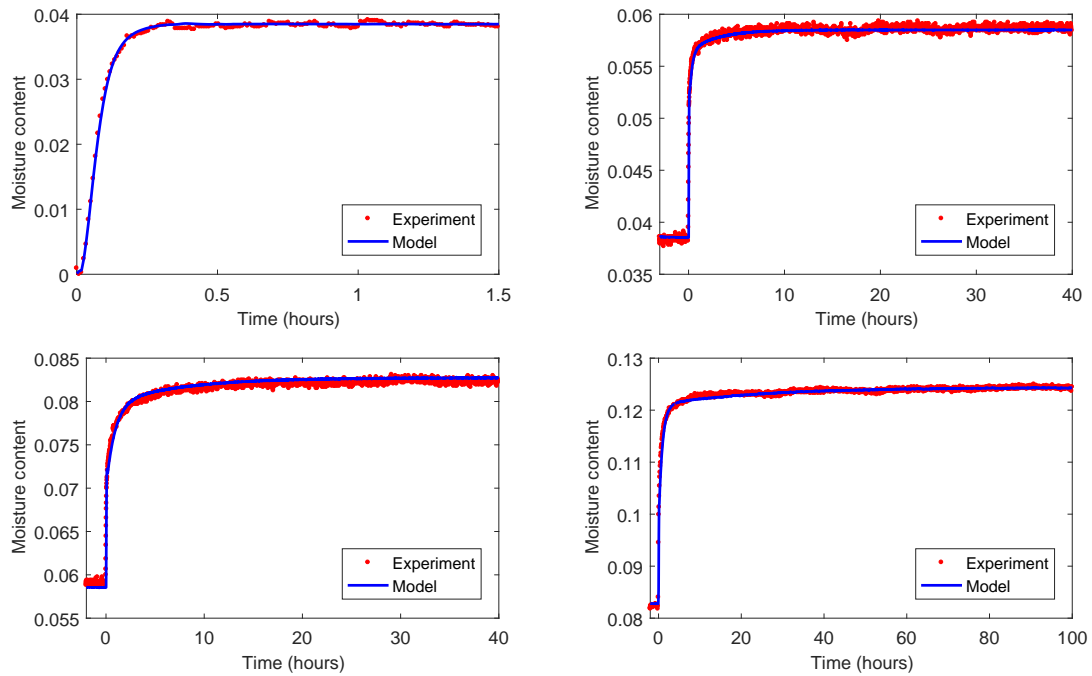


Figure 10: From left to right and top to bottom: Identification for LDF during stepwise RH from (a) 0% to 20%, (b) 20% to 40%, (c) 40% to 60%, and (d) 60% to 80%

Figure 10 presents the experimental simulated curves, after identification, for the four RH steps imposed on the LDF sample. These results are also summarized in Table 1. The agreement between the model and the experiment is very good for every step. As expected, for the jump in RH from 0% to 20% (Fig. 10(a)), a single short relaxation time is needed to fit the experiment. The identified characteristic time (τ_{fd}) is ~ 3 min and its proportion (α_{fd}) is close to one, which seems to prove that the surrounding effect behind this function is diffusion in fibers. For the jumps in RH from 20% to 40% and 40% to 60% (Figs. 10(b) and 10(c)), two exponential functions were required to fit the experimental results. The short characteristic times were ~ 17 min for the 20%–40% jump and 50 min for the 40%–60% jump. The proportions of short-time relaxation were 0.3 for the 20%–40% jump and 0.38 for the 40%–60% jump. For the long-time relaxation, the characteristic times identified were ~ 3 h for the 20%–40% jump and 7 h for the 40%–60% jump with proportions of 0.10 and 0.13, respectively. We note an increase in the long characteristic time with RH, which was expected for molecular relaxation. However, the characteristic time linked with fiber diffusion also increases with RH, whereas it was expected to decrease. Indeed, several published works reported that bound water diffusion in wood increases with moisture content [39, 40]. The inverse procedure uses the degrees of freedom available with only two exponential functions to obtain the minimum value of the objective function. We believe that this could force the first function (the one having the shortest characteristic time) to account partly for diffusion inside the fibers (dual-scale mechanisms) and partly for molecular relaxation. This would also explain why the proportion α_{fd} is close to one for the 0%–20% jump and not for others. It is only for this jump that the first exponential function captures overwhelmingly the classic diffusive behavior. For the RH jump from 60% to 80%, the short characteristic time is very close to the previous ones, whereas the long characteristic time is much longer (~ 36 h). In all cases, the sum of these two functions is likely to well represent the time evolution of moisture content and hence can be used for prediction in a macroscopic coupled model.

Jumps in RH (%)	α_{fd}	τ_{fd} (s)	α_{mr}	τ_{mr} (s)
0–20	0.45	4.2×10^2		
20–40	0.41	9.4×10^2	0.02	1.2×10^4
40–60	0.44	1.7×10^3	0.06	1.4×10^4
60–80	0.49	1.5×10^3	0.06	1.1×10^5

Table 2: Identified coefficients for Spruce

For Spruce wood, experimental and simulated results for each jump in RH are plotted in Fig. 11 and summarized in Table 2. For the short characteristic times, the proportions are similar for each step (varying from 0.41 to 0.49). Similarly to what is seen in LDF, the short characteristic times tend to rise with moisture content up to 60% (7, 15, 28, and 23 min); again, there is no need for a second exponential function for the 0%–20% jump. However, the values of those time constants are about half of those found for LDF for the 40%–60% and 60%–80% RH jumps. For the second exponential function, the long characteristic times are close to the ones found for LDF, whereas their proportions are lower. These observations seem to be consistent with the fact that, during the manufacturing of LDF (wet process), high temperatures (~ 200 °C) are reached [41]. Indeed, it has been shown

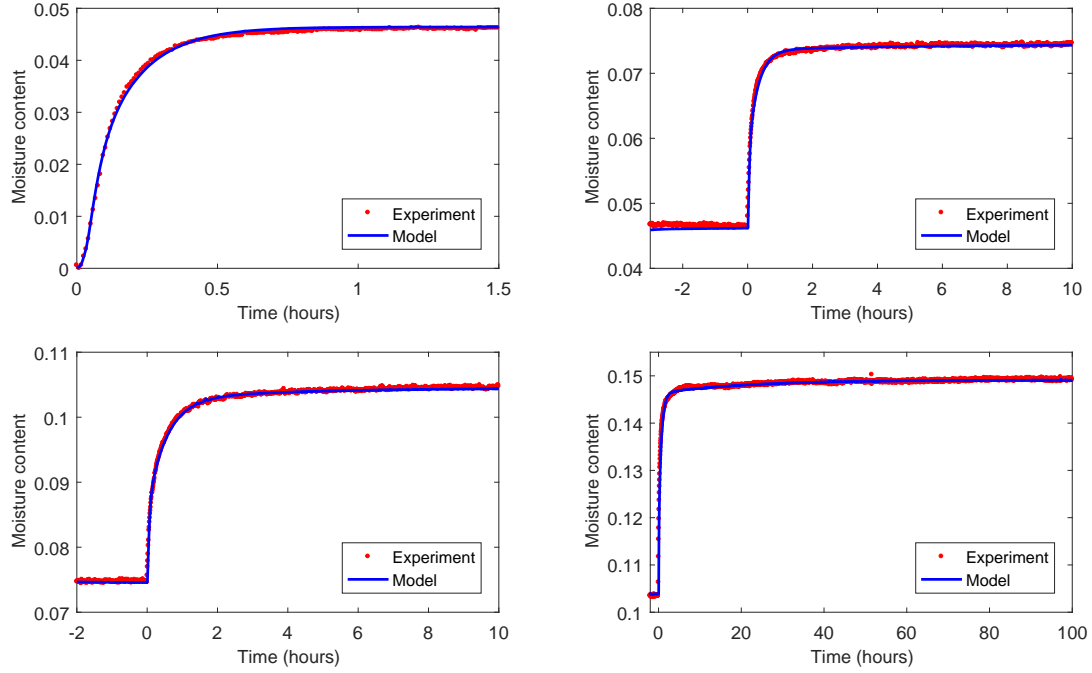


Figure 11: From left to right and top to bottom: Identification for spruce during stepwise RH from (a) 0% to 20%, (b) 20% to 40%, (c) 40% to 60%, and (d) 60% to 80%

that thermally modified wood has a more important non-Fickian diffusive behavior tied to molecular relaxation [16].

Jumps in RH (%)	α_{fd}	τ_{fd} (s)	α_{mr}	τ_{mr} (s)
0–20	0.71	2.8×10^2		
20–40	0.58	1.1×10^3		
40–60	0.45	2.3×10^3	0.02	4.1×10^4
60–80	0.58	1.5×10^4	0.08	3.0×10^5

Table 3: Identified coefficients for MDF

The results for MDF can be observed in Fig. 12 and are summarized in Table 3. MDF is quite different from the two previous materials:

- Its macroscopic diffusive coefficient is lower by almost one order of magnitude, and
- it contains resin and wax in addition to wood fibers.

The first three jumps in RH are quite similar to those in other materials. For the jump in RH from 0% to 20%, a characteristic time of ~ 5 min is found. Jumps from 20% to 40% and 40% to 60% are also similar, with short characteristic times of ~ 20 and ~ 50 min. A long-time relaxation is needed to fit with the experimental data only for the 40%–60% stepwise change. Finally, for the 60%–80% RH jump, the short relaxation time is much higher than the previous one (~ 4 h). This difference in the diffusive behavior is clearly

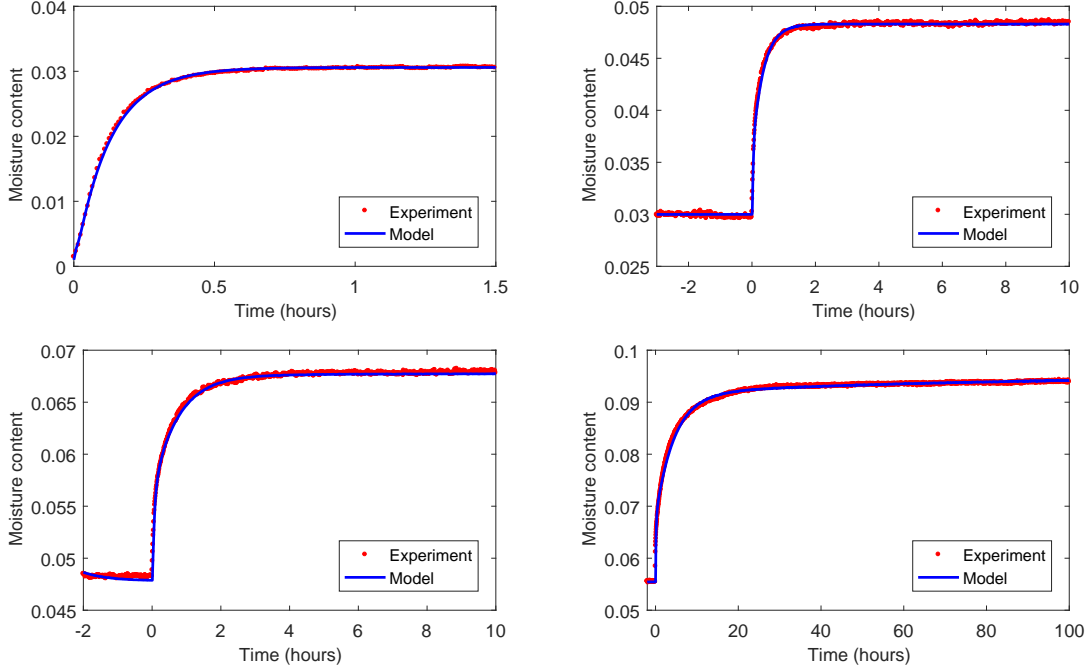


Figure 12: From left to right and top to bottom: Identification for MDF during stepwise RH from (a) 0% to 20%, (b) 20% to 40%, (c) 40% to 60%, and (d) 60% to 80%

observable when comparing Figs. 12(c) and 12(d). During the 40%–60% jump, it took <1 h for the mass to reach 60% of its asymptotic value, whereas for the 60%–80% jump, it took >3 h to reach 60% of the final value. Because no comparable observation was done on LDF and Spruce, this fact is likely to be due to the presence of resin, which might be more prone to molecular relaxation. A second exponential function is needed to fit the experiment. Its proportion is similar to what was found for previous materials (0.08) but its characteristic time is much higher (83 h).

5.2. Identification of the diffusive coefficient of the fibers

Experimental observation of LDF done with environmental scanning electron microscopy (Fig. 13) has shown that the fibers are preferentially oriented in planes parallel to the face of the fiberboard and that their average radius is $\sim 20 \mu\text{m}$. Therefore, the medium can be modeled by infinite cylinders perpendicular to the macroscopic diffusive path (similar to what can be observed in Fig. 1(a)). The moisture diffusion inside the fibers can thus be reduced to a two-dimensional problem (similar to what can be observed in Fig. 1(b)). The analytic solution corresponding to the average moisture inside the cylinder is known [42]. As stated before, this solution corresponds to the memory function φ , and thus one has

$$\varphi = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{a^2 \beta_n^2} \exp(-D_{micro} \beta_n^2 t), \quad (9)$$

where D_{micro} is the microscopic diffusive coefficient of the fibers, a is the radius of a fiber, t is time, and β_n is defined such that $a\beta_n$ is the n th root of the Bessel function of order zero.

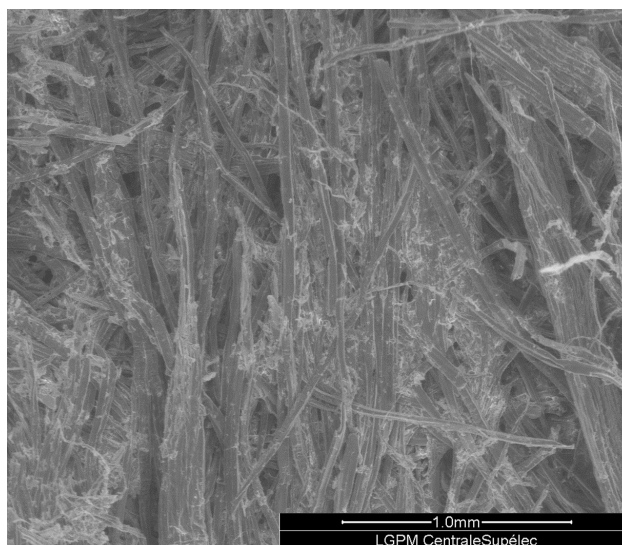


Figure 13: ESEM image of LDF

By using φ_{fd} , the exponential function tied to fiber diffusion identified for the jump of ambient RH from 0% to 20% for LDF, it is thus possible to identify D_{micro} .

The identification procedure also uses the downhill Simplex algorithm. The number of terms, n , for the analytic solution was chosen at 500 and the roots β_n were found using an algorithm based on Halley's method. The identified value is $D_{micro} = 3.14 \times 10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. This value is close to what was found in Ref. [38].

6. Conclusion and perspectives

This work focuses on non-Fickian diffusion in biosourced materials. A recently developed formulation that can model this phenomenon through memory functions has been implemented in a computational code. This code was used in an inverse procedure to identify those memory functions for LDF, MDF, and Spruce wood. To do so, minute samples were submitted to RH variations while their masses were recorded. The following conclusions can be drawn from this work:

- The new formulation is able to capture the physics of the transfer inside those materials whereas the classic diffusive model fails.
- As confirmed by simulations and a sensitivity analysis, when using thin samples microscopic effects dominate over macroscopic effects.
- The microscopic diffusive coefficient of wood fibers can be identified.
- The effect of molecular relaxation is very different from one material to the other.

The identified memory functions could be used to predict the behavior of thicker samples. This would confirm that those functions only characterize the microscopic behavior of the material. In particular, we would like to check whether the formulation fed with those

memory functions is able to predict the delay between RH and moisture content induced by the absence of thermodynamic equilibrium. A new experimental device is currently being developed to answer this question.

References

- [1] H. Künzle, A. Holm, D. Zirkelbach, A. Karagiozis, Simulation of indoor temperature and humidity conditions including hygrothermal interactions with the building envelope, *Solar Energy* 78 (4) (2005) 554–561. doi:10.1016/j.solener.2004.03.002. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0038092X04000507>
- [2] J. Jacques, M. Labat, M. Woloszyn, Dynamic coupling between vapour and heat transfer in wall assemblies : Analysis of measurements achieved under real climate, *Building and Environment* 87 (2015) 129–141. doi:10.1016/j.buildenv.2015.01.022.
- [3] R. Rémond, G. Almeida, Mass diffusivity of low-density fibreboard determined under steady- and unsteady-state conditions : Evidence of dual-scale mechanisms in the diffusion, *Wood Material Science and Engineering* 6:1-2 (2011) 23–33. doi:10.1080/17480272.2010.515035.
- [4] D. Lelievre, T. Colinart, P. Glouannec, Hygrothermal behavior of bio-based building materials including hysteresis effects: Experimental and numerical analyses, *Energy and Buildings* 84 (2014) 617–627. doi:10.1016/j.enbuild.2014.09.013. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.enbuild.2014.09.013>
- [5] P. Perré, F. Pierre, J. Casalinho, M. Ayouz, Determination of the Mass Diffusion Coefficient Based on the Relative Humidity Measured at the Back Face of the Sample during Unsteady Regimes, *Drying Technology* 33:9 (2015) 1068–1075. doi:10.1080/07373937.2014.982253.
- [6] K. Krabbenhoft, L. Damkilde, Double porosity models for the description of water infiltration in wood, *Wood Science and Technology* 38 (2004) 641–659. doi:10.1007/s00226-004-0253-5.
- [7] U. Nyman, P. J. Gustafsson, B. Johannesson, R. Hägglund, A numerical method for the evaluation of non-linear transient moisture flow in cellulosic materials, *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 66 (2006) 1859–1883. doi:10.1002/nme.1597.
- [8] P. Perre, Multiscale Modeling of Drying as a Powerful Extension of the Macroscopic Approach: Application to Solid Wood and Biomass Processing, *Drying Technology* 28 (8) (2010) 944–959. doi:10.1080/07373937.2010.497079.
- [9] P. Perré, Multiscale aspects of heat and mass transfer during drying, *Transport in Porous Media* 66 (1-2) (2007) 59–76. doi:10.1007/s11242-006-9022-2.
- [10] E. Agoua, Diffusivité et perméabilité du bois: validation de méthodologies expérimentales et prise en compte de paramètres morphologiques simples, Ph.D. thesis, ENGREF Nancy (2001).

- [11] E. T. Engelund, L. G. Thygesen, S. Svensson, C. A. Hill, A critical discussion of the physics of wood-water interactions, *Wood Science and Technology* 47 (1) (2013) 141–161. doi:10.1007/s00226-012-0514-7.
- [12] C. A. S. Hill, Y. Xie, The dynamic water vapour sorption properties of natural fibres and viscoelastic behaviour of the cell wall: Is there a link between sorption kinetics and hysteresis?, *Journal of Materials Science* 46 (11) (2011) 3738–3748. doi:10.1007/s10853-011-5286-1.
URL <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-79953779998&partnerID=40&md5=e9>
- [13] L. Wadsö, Describing non-Fickian water-vapour sorption in wood, *Journal of Materials Science* 29 (9) (1994) 2367–2372. doi:10.1007/BF00363428.
- [14] G. Christensen, Sorption and Swelling within Wood Cell Walls, *Nature* 213 (1967) 782–784.
- [15] J. Crank, A theoretical investigation of the influence of molecular relaxation and internal stress on diffusion in polymers, *Journal of Polymer Science* 11 (2) (1953) 151–168. doi:10.1002/pol.1953.120110206.
URL <http://dx.doi.org/10.1002/pol.1953.120110206>
- [16] W. Olek, R. Rémond, J. Weres, P. Perré, Non-Fickian moisture diffusion in thermally modified beech wood analyzed by the inverse method, *International Journal of Thermal Sciences* 109 (2016) 291–298. doi:10.1016/j.ijthermalsci.2016.06.023.
- [17] H. Håkansson, Retarded sorption in wood: Experimental study, analyses and modelling, Ph.D. thesis, Lund University (1998).
- [18] P. Perré, Coupled heat and mass transfer in lignocellulosic materials : a macroscopic formulation with non-Fickian effects suitable for Building Energy Simulation Tools, Submitted.
- [19] P. Perré, The Proper Use of Mass Diffusion Equations in Drying Modeling : Introducing the Drying Intensity Number, *Drying Technology* 33 (15-16) (2015) 1949–1962. doi:10.1080/07373937.2015.1076836.
URL <http://dx.doi.org/10.1080/07373937.2015.1076836>
- [20] P. Perré, I. W. Turner, A 3-D version of TransPore: a comprehensive heat and mass transfer computational model for simulating the drying of porous media, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 42 (24) (1999) 4501–4521. doi:10.1016/S0017-9310(99)00098-8.
URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931099000988>
- [21] T. Kawasaki, M. Zhang, S. Kawai, Manufacture and properties of ultra-low-density fiberboard, *Journal of wood sciences* 44 (1998) 354–360.
- [22] Ł. Czajkowski, W. Olek, J. Weres, R. Guzenda, Thermal properties of wood-based panels : specific heat determination, *Wood Science and Technology* 50 (3) (2016) 537–545. doi:10.1007/s00226-016-0803-7.

- [23] J. Lux, A. Ahmadi, C. Gobbe, C. Delisée, Macroscopic thermal properties of real fibrous materials : Volume averaging method and 3D image analysis, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49 (2006) 1958–1973. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.09.038.
- [24] O. Vololonirina, M. Coutand, B. Perrin, Characterization of hygrothermal properties of wood-based products - Impact of moisture content and temperature, *Construction and Building Materials* 63 (2014) 223–233. doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014>
- [25] S. Ganev, R. Beaugard, G. Gendron, Effect of pannel moisture content and density on moisture movement in MDF, *Wood and Fiber Science* 35 (1) (2003) 68–82.
- [26] W. Sonderegger, P. Niemz, Thermal conductivity and water vapour transmission properties of wood-based materials, *European Journal of Wood and Wood Products* 67 (3) (2009) 313–321. doi:10.1007/s00107-008-0304-y. URL <http://link.springer.com/10.1007/s00107-008-0304-y>
- [27] J. Siau, *Transport Processes in Wood*, Springer-Verlag, 1984.
- [28] G. Almeida, J. P. Lancha, F. Pierre, J. Casalinho, P. Perré, Physical behavior of highly deformable products during convective drying assessed by a new experimental device, *Drying Technology* 35 (8) (2017) 906–917. doi:10.1080/07373937.2016.1233883.
- [29] Lars Wadsö, Measurements of water vapour sorption in wood, *Wood Science and Technology* 28 (1993) 59–65. doi:10.1007/BF00193877. URL <http://link.springer.com/10.1007/BF00193877>
- [30] P. Perré, How to Get a Relevant Material Model for Wood Drying Simulation ?, COST Action E 15 - Advances in drying of wood (1999-2003) (January) (1999) 1–34.
- [31] P. Perré, B. May, The existence of a first drying stage for potato proved by two independent methods, *Journal of Food Engineering* 78 (4) (2007) 1134–1140. doi:10.1016/j.jfoodeng.2005.12.025.
- [32] M. Peszynska, *Fluid Flow Through Fissured Media. Mathematical Analysis and Numerical Approach*, Ph.D. thesis, University of Ausburg (1992).
- [33] J. Crank, *The mathematics of diffusion*, Oxford University Press, 1975.
- [34] A. Bouali, R. Rémond, G. Almeida, P. Perré, Thermo-diffusion in wood: X-ray MC profiles analysed using a 2-D computational model, in: *Proceedings of the 18 th International Drying Symposium, 2012*, pp. 11–15.
- [35] Simo JC; Hughes TJR, *Computational Inelasticity*, Springer-Verlag, 1998.
- [36] B. Mauguet, P. Perré, A large displacement formulation for anisotropic constitutive laws, *European Journal of Mechanics - A/Solids* 18 (1999) 859–877.
- [37] J. A. Nelder, R. Mead, The Downhill Simplex Algorithm, *Computer Journal* 7 ((S 308)).

- [38] G. Almeida, R. Remond, P. Perré, Evidence of Dual-Scale Diffusion Mechanisms in Low Density Fibreboards : Experiment and Multiscale Modelling, in: International Drying Symposium, Magdeburg, 2010.
- [39] S. Avramidis, J. F. Siau, An investigation of the external and internal resistance to moisture diffusion in wood, *Wood Science and Technology* 21 (3) (1987) 249–256. doi:10.1007/BF00351396.
- [40] A. J. Stamm, Bound-water diffusion into wood in the fiber direction, *Forest Product Journal* 9 (1959) 27–32.
- [41] O. Suchsland, G. E. Woodson, *Fiberboard manufacturing Practices In the United States*, U.S. Government printing office, 1986.
- [42] H. S. Carslaw, J. C. Jaeger, *Conduction of heat in solids*, Oxford Science Publications, 1959.

Chapitre 6

Prédiction du déphasage entre humidité relative et teneur en eau

6.1 Introduction

L'une des conséquences du non équilibre local est l'apparition en régime transitoire d'un déphasage entre deux grandeurs : humidité relative et teneur en eau. En effet, à cause du retard induit par la diffusion à l'échelle microscopique, la première est en avance sur la seconde. Ce phénomène a pour conséquence une mauvaise prédiction des transferts hygrothermiques.

Dans ce chapitre, un nouveau dispositif expérimental (détaillé en annexe B) est développé afin de mettre en évidence le non équilibre local à l'échelle macroscopique. Il permet de soumettre un échantillon de quelques centimètres d'épaisseur à une perturbation de l'humidité relative sur sa face avant. On mesure ensuite simultanément l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière ainsi que de sa teneur en eau moyenne via sa masse. Ce dispositif est utilisé sur des échantillons de LDF de différentes épaisseurs et masses volumiques ainsi que sur du MDF.

Les données recueillies sont ensuite utilisées dans une procédure inverse afin d'identifier le coefficient de diffusion réduit f . Lorsque une formulation classique de transferts couplés chaleur masse est utilisée dans cette procédure, le coefficient identifié ne réussit pas à prédire correctement l'évolution de l'humidité relative et de la teneur en eau moyenne simultanément. Il existe bien un déphasage entre ces deux grandeurs ce qui confirme l'existence du non équilibre local.

Ces mêmes données sont ensuite utilisées dans une procédure inverse en se servant de la nouvelle formulation (détaillée en annexe A) alimentée par les fonctions mémoires déterminées au chapitre 5. Dans cette configuration le coefficient f identifié permet

une excellente prédiction des deux grandeurs pour les différents échantillons de LDF. Il subsiste des différences pour les échantillons de MDF indiquant que l'origine du déphasage est sans doute différente.

Ce travail a été soumis dans **Energy and Buildings** le 3 janvier 2019.

Non-Fickian diffusion in biosourced materials: Prediction of the delay between relative humidity and moisture content

A. Challansonnex^a, J. Casalinho^a, P. Perré^{a,b}

^a*LGPM, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, 8-10 rue Joliot-Curie,
91 190 Gif-sur-Yvette, France*

^b*LGPM, CentraleSupélec, Centre Européen de Biotechnologie et de Bioéconomie (CEBB), 3 rue des
Rouges Terres, 51 110 Pomacle, France*

Abstract

This work focuses on non-Fickian diffusion in biosourced building materials. To study these memory effects in these kinds of materials, an original, automatic device was conceived and built. The device allows a series of samples to be submitted, simultaneously, to a perturbation of relative humidity (RH) at its front face and to record the evolution of sample mass and of RH at its back face. When analyzed using a classical heat and mass transfer model, the experimental data depict a delay between RH and moisture content, with the RH evolution being too fast. To address this problem, a new formulation able to model those types of behaviors using memory functions was used. To test the predictive potential of the new formulation, these memory functions were not identified but taken from a previous work, where they were determined experimentally using minute samples. A full set of experiments performed with low- and medium-density fiberboard was simulated using this new formulation fed by the experimental memory functions. The good agreement found between simulated and experimental results proves the predictive potential of the new macroscopic formulation.

Keywords: building, coupled transfer, energy, experiment, fading memory, macroscopic formulation, renewable materials

1. Introduction

In recent decades, there has been a strong interest in bio-based materials in the construction industry. Bio-based materials can be found in many forms and used in many applications, including as solid wood for the structure, as fibrous materials (wood fibers, straw, etc.) for insulation, and as hemp concrete for mixed use. This interest is partly due to the low carbon footprint of these materials of plant origin (hence offering carbon capture) and their renewable nature [1, 2, 3, 4]. However, it is also due to their hygrothermal properties. Indeed, it has been shown that, owing to their high hygroscopicity, these materials can help to regulate ambient humidity and thus improve indoor air quality or even reduce energy consumption [5, 6, 7]. However, when it comes to simulating their dynamic behavior at the building or even laboratory level, significant differences are observed in experiments [8, 9, 10]. These differences can have different origins, one

of them being the parameters that feed the building energy simulations [11, 12]. For instance, methodological errors in the vapor diffusivity measurement [13] and the failure to consider the hysteresis of the sorption isotherm [14, 15] are some of the issues currently explored. For fibrous insulation materials, significant errors in the kinetics of water vapor transfer within the materials can be explained by the absence of local thermodynamic equilibrium [16, 17, 18, 19]. Indeed, these materials consist of two phases with contrasting characteristics. The gaseous phase, which is highly diffusive and well connected, and the solid phase (the fibers), which is poorly diffusive. The microscopic diffusive time inside the fibers can therefore be of the same order of magnitude as the macroscopic diffusive time, which explains the possibility of nonlocal equilibrium. The consequences of this phenomenon are manifold. One can cite the dependency with thickness of the macroscopic vapor diffusion coefficient in the transient state [20] or the different values obtained when measured in the transient or steady state [21]. The presence of a phase shift between relative humidity (RH) and moisture content, as reported in [22] is also likely to be explained by this phenomenon. Indeed, because of the delayed diffusion inside the fiber, changes in RH precede those in moisture content. Consequently, in building energy simulations, this phenomenon generates errors in calculating the quantity of vapor transferred and the moisture quantity stored inside the walls. In turn, because of the latent heat of evaporation, this induces important errors in the energy demand.

The first objective of this work is to establish a reliable experimental dataset to unquestionably confirm the existence of memory effects at the scale of centimetric samples. Our strategy is to prove that a simple macroscopic model is not able to fit the experiment, which requires at least two independent physical parameters to be measured simultaneously. To achieve this goal, an original, automatic device was conceived and built. This device allows a series of samples to be tested simultaneously. Each sample is submitted to a perturbation of RH at its front face and the evolution of sample mass and of RH at its back face are continuously recorded.

The data collected by this new device confirm the memory effects: A classical heat and mass transfer (H&M) model is not able to predict correctly, at the same time, the evolution of averaged moisture content and the RH at the back face.

To overcome this problem, a new macroscopic formulation able to consider the memory effects using kernel functions was used [23]. This formulation is embedded in a comprehensive model that accounts for the coupling between heat and mass transfer. The comprehensive formulation is solved by using the in-house computational code *Trans-Pore* [24, 25]. In a previous study [26], very thin samples of biosourced materials were submitted to variations in ambient RH while their masses were recorded. The memory functions that represent the microscopic diffusive behavior of the materials were defined from these experiments by inverse analysis.

In the present work, these memory functions were used as input data in the new macroscopic model. Finally, just one parameter was identified using the new dataset: the macroscopic water vapor diffusivity. All other macroscopic values (intrinsic permeability, sorption isotherms, thermal conductivity, etc.) come from previously published works and the external heat transfer coefficient was determined experimentally. A full set of experiments performed with low-density fiberboard (LDF) and medium-density fiberboard (MDF) was simulated using this new formulation fed by the experimental

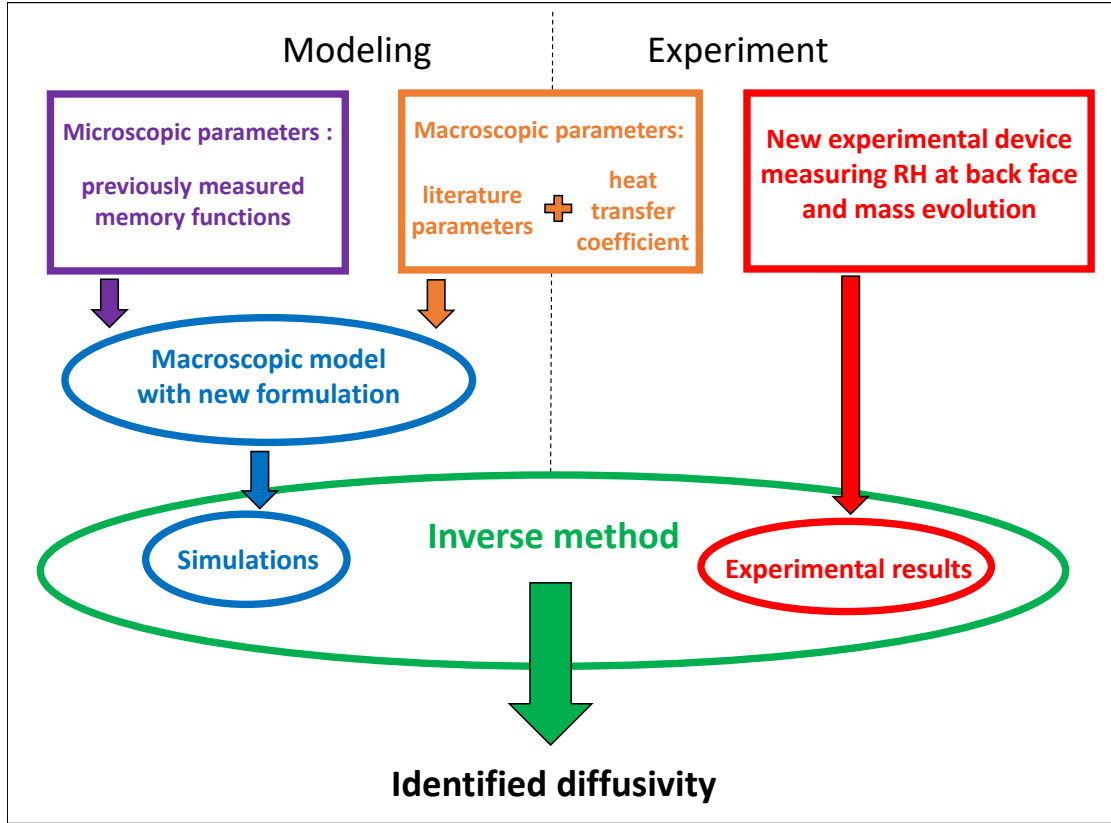


Figure 1: Principle of the identification procedure

memory functions. Good agreement was found between simulated and experimental results. This strategy, developed to prove the predictive potential of the new formulation, is summarized in Fig. 1.

2. Materials and methods

2.1. Materials

The materials that were studied in this work are LDF and MDF. LDF is a fibrous material used for insulation. It is made of wood fibers agglomerated by their bonding properties during the so-called wet process [27]. Its hygrothermal properties have been widely studied [28, 29, 30, 31, 32]. In this work, panels of LDF with different thicknesses and densities were studied; all were produced by Steico (Munich, Germany). The testing of different thicknesses is important in the context of this research as the effect of nonlocal equilibrium should be greater with thin panels. Indeed, the macroscopic characteristic time increases as the thickness squared and eventually becomes higher than the microscopic characteristic time. Therefore, the material becomes progressively homogenizable.

Characteristics of the three different panels are as follows (with all densities being measured at 40% RH):

- a 20-mm-thick panel with a density of $145 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$,



Figure 2: Photograph of the samples: From left to right and top to bottom: LDF ($255 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$; 10 mm), LDF ($145 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$; 20 mm), LDF ($234 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$; 19 mm), and MDF ($655 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$; 10 mm)

- a 10-mm-thick panel with a density of $255 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, and
- a 19-mm-thick panel with a density of $234 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

Note that, although the two last panels have different densities, they are sold under the same commercial name.

In contrast to LDF, MDF is made of wood fibers tied by an adhesive: Fibers, urea-formaldehyde resin, and paraffin wax are processed at high temperature and pressure to manufacture the panels [33]. This produces a structural material mostly used for internal decoration and furniture. Its hygrothermal properties have also been widely studied [34, 35]. In this work, a 10-mm-thick panel with a density of $655 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ was studied.

Disk-shaped samples with a diameter of 72 mm were cut from those panels. As in previous studies [36, 37], the samples were coated with an aluminum foil glued to the lateral faces by epoxy resin to avoid lateral water vapor leakage. A photograph of the different types of samples is depicted in Fig. 2.

2.2. Experimental setup

The principle of the measurement is to impose a sudden perturbation of RH at the front face of the sample that will create a transient diffusive flux through it. During

the test, the sample mass and the RH at its back face are measured and recorded. As sorption tests are time consuming, we designed an original experimental setup able to measure these two pieces of information simultaneously on several samples. Fig. 4 depicts a computer-aided design (CAD) three-dimensional (3D) model of the setup (left) and a general view of its realization (right). The automatic device was conceived to measure sequentially the mass and the RH at the back face of each sample without any wires that would perturb weighing. To do so, the sample is placed in a support that includes a RH/temperature sensor positioned at its back face. This sensor is connected to a target at the top of the support. Therefore, it can acquire the evolution of RH at the back face of the sample by ensuring temporary contact between this target and electrical contacts during an upward motion (Fig. 5(left)). For the weighing stage, the support is placed on the weighing plate during a downward motion (Fig. 5(right)). The design includes a crown-shaped holder. During the test, the crown rotates to measure successively each sample. Up to eight samples can be placed simultaneously, which is very useful given that the necessary observation time can be as long as several weeks. The following subsections give additional details on the experimental device and test protocol.

2.3. *Climatic chamber*

This in-house climatic chamber, built from an insulated container (Froid Loisir Equipement, Saillans, France), is divided into two volumes by a vertical plate: an operational chamber that contains the setup and a narrow rear chamber for temperature and RH control. Temperature control is ensured by a regulated heating resistance and RH is ensured by an air flow forced against a water film set at the dew-point temperature. The water is pumped from a thermocryostat (Ministat230, HUBER, Offenburg, Germany) to the top of the rear chamber where it flows along a plate. Three ventilators ensure the air flow. Two RH/temperature sensors (Sensirion SHT75, HDI Electronics, Pérois, France) are placed at opposite corners of the climatic chamber to record its average conditions. In Fig. 3, one can see the evolution of the average RH and temperature inside the climatic chamber while performing a stepwise change in RH from 40% to 60%. It takes ~ 10 min for the thermocryostat to reach the targeted temperature. At this time, the change in RH already reached 90% of its total change. The targeted value is obtained after about one hour, when the temperature has decreased to its equilibrium value. One can observe that, once the conditions are constant, the regulation allows very stable conditions to be obtained, in both RH and temperature.

2.4. *Sample supports*

The sample support was designed and manufactured to fulfill several functions: (i) to allow the sample to be weighed without perturbation, (ii) to ensure temporary contact for RH measurement, and (iii) to ensure good exposure of the sample front face to the chamber conditions (Fig. 6). The holder and impervious-disk designs are based on previous studies ([38], [36], [37]). The impervious disk, which has the same diameter as the sample, has a small cavity that contains a SHT75 temperature/humidity sensor. This disk is inserted against the sample inside the holder whose internal diameter is larger. To ensure air tightness, a rubber tube whose internal diameter is smaller than the sample has been previously fixed inside the holder. A small hole in the holder lateral

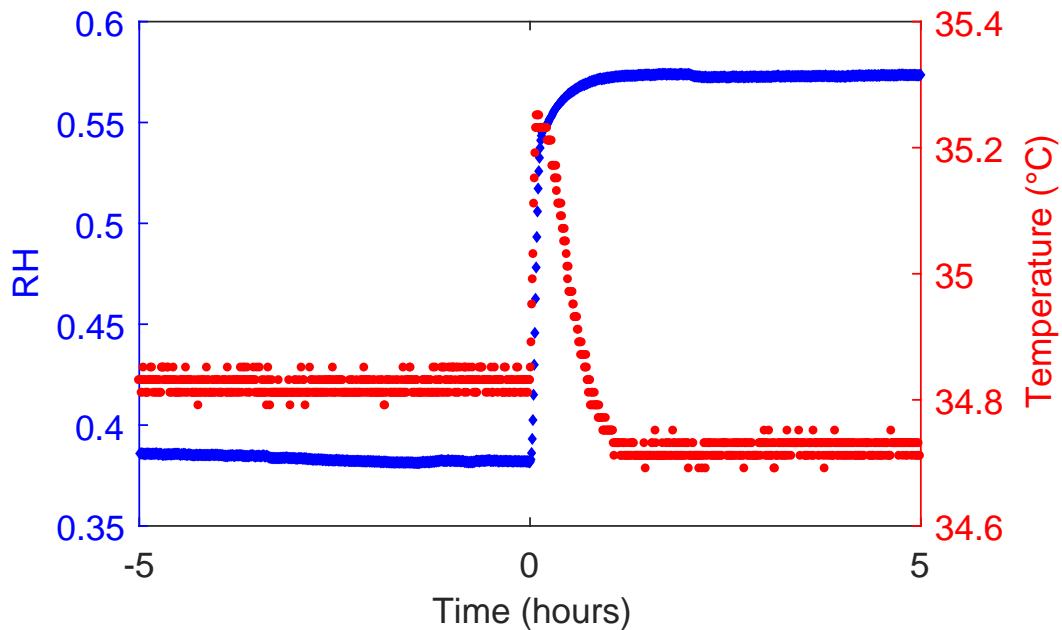


Figure 3: Evolution of RH and temperature inside the climatic chamber during an RH step from 40% to 60%

face allows a vacuum pump to be plugged between the rubber tube and the holder internal face. The under-pressure presses the rubber against the holder face, so that the sample/disk assembly can be inserted. When the vacuum pump is unplugged, the rubber tube squeezes the lateral face of the sample/disk, ensuring airtightness in spite of dimensional changes of the sample. The sensor is linked to the target at the top of the support, which transmits the information during the temporary contact. It is important to mention that two precautions are required to ensure perfect airtightness: Two coats of resin epoxy are applied on the lateral face of the sample before the test and some void grease is put between the rubber tube and the epoxy surface when placing the sample into the support.

The support is perfectly centered inside the crown sample holder owing to its conical shape. This ensures two functions:

- avoidance of any friction when the crown moves downward for weighing (Fig. 5(right)) and
- accurate contact between the target and the contacts when the crown moves upward for RH measurement (Fig. 5(left)).

2.5. General assembly

The general assembly can be observed in Fig. 4(left). The crown holding all samples can move vertically to ensure weighing and RH measurement and can rotate to successively handle each sample. This is ensured, respectively, by an electromechanical actuator (EMC32-12, Rexroth, Lohr am Main, Germany) driven by a DC motor and a

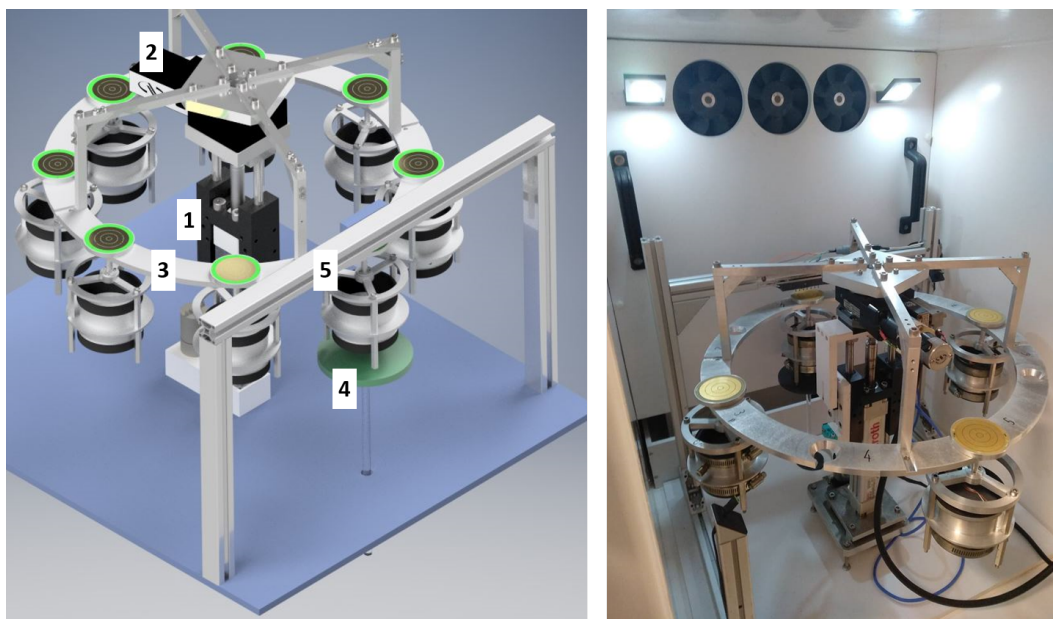


Figure 4: (Left) CAD representation of the setup with (1) electromechanical cylinder, (2) horizontal motor, (3) crown, (4) weighing system, (5) and structure for RH acquisition; (right) photograph of the whole setup in the climatic chamber

precision rotation stage (M-URM80, Newport Corporation, Irvine, United States). Three vertical positions are secured: (i) the upper position for temporary contact with the RH sensor (Fig. 5(left)), (ii) the lower position to put the sample on the weighing plate (Fig. 5(right)), and the intermediate position allowing free rotation of the crown.

To protect the electronic balance from the chamber conditions, the balance (EP6102C, Ohaus, Greifensee, Switzerland, with a precision of 0.01 g) was placed beneath the climatic chamber. A stable, adjustable support secured on the balance plate holds a glass rod crossing the chamber wall without friction. The internal weighing plate is then fixed on this rod. The glass rod presents good stiffness together with low thermal conductivity, required to avoid condensation near the chamber wall.

2.6. *Experimental protocol*

The whole setup is remotely controlled using software developed in *Microsoft Visual Basic*. For each sample, a first acquisition of RH at the back face of the sample is done by placing the target against the contacts. The ventilation is then shut down to lower the weighing noise. After taring, the support is placed on the weighing plate. After mass acquisition, the ventilation is switched on and another RH acquisition is made. The support is then placed in the intermediate position to allow rotation to proceed to the next sample. The RH value used as the raw datum is the average of the measurements before and after weighing and is allocated to the weighing time. Once all samples have been treated, the rotation stage returns to its reference position, enabling the device to collect additional data.

In this work, two samples (A and B) of each kind were tested. Therefore, a total of eight samples were tested during two different experiments (i.e., four samples per

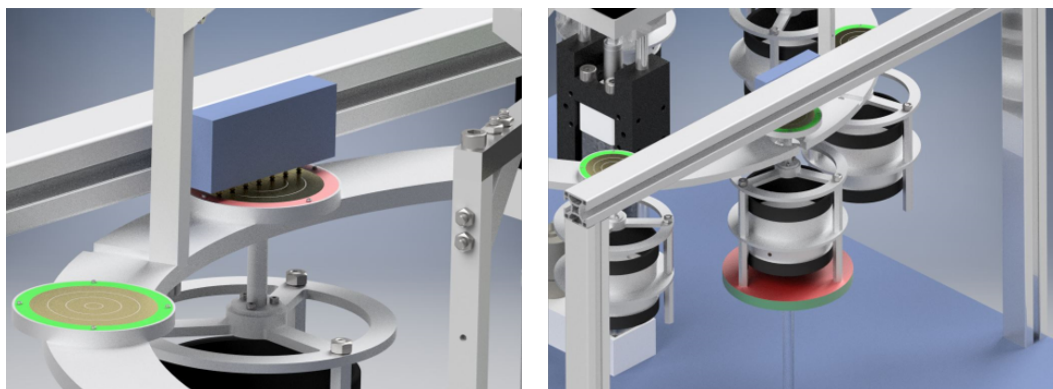


Figure 5: (Left) Sample support in the upper position; the contact between the target (in red) and the contacts allows the acquisition of RH at the back face of the sample; (right) sample support in the lower position; the sample support is placed on the weighing plate (in red)

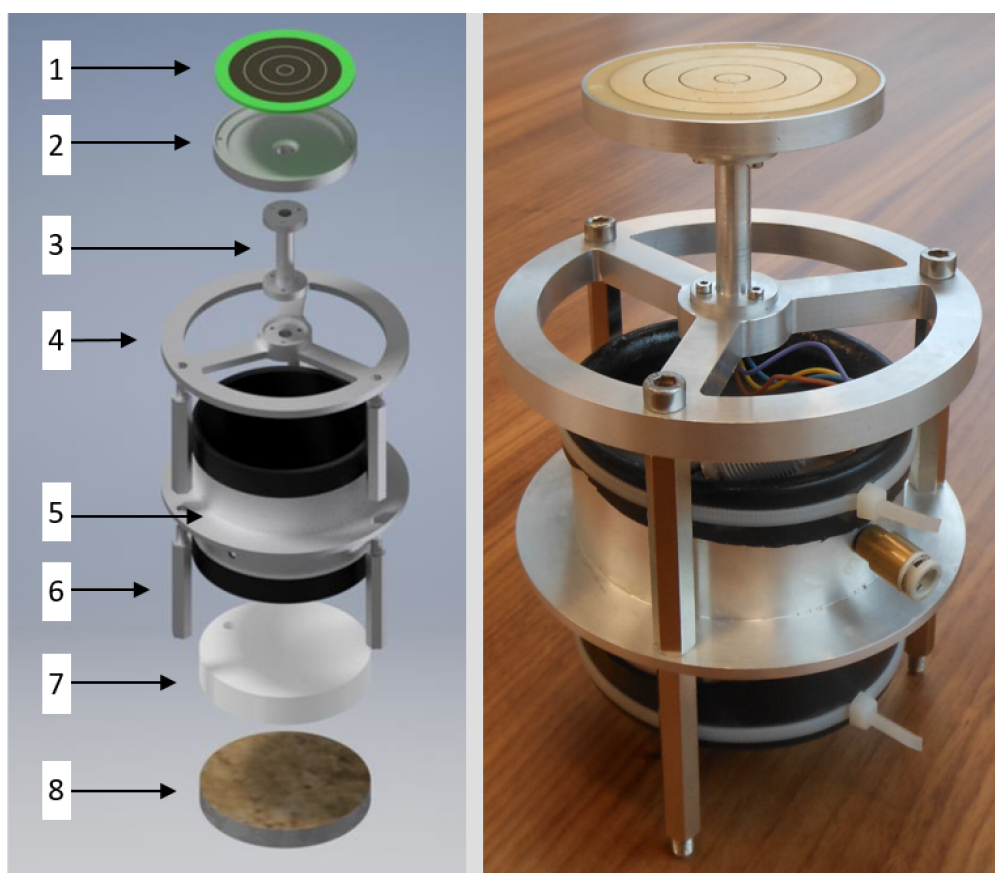


Figure 6: (Left) Expanded view of the 3D model with (1) target, (2) cone, (3) rod, (4) upper part, (5) holder (with rubber tube inside), (6) spacer, (7) impervious disk, and (8) sample; (right) photograph of the sample support

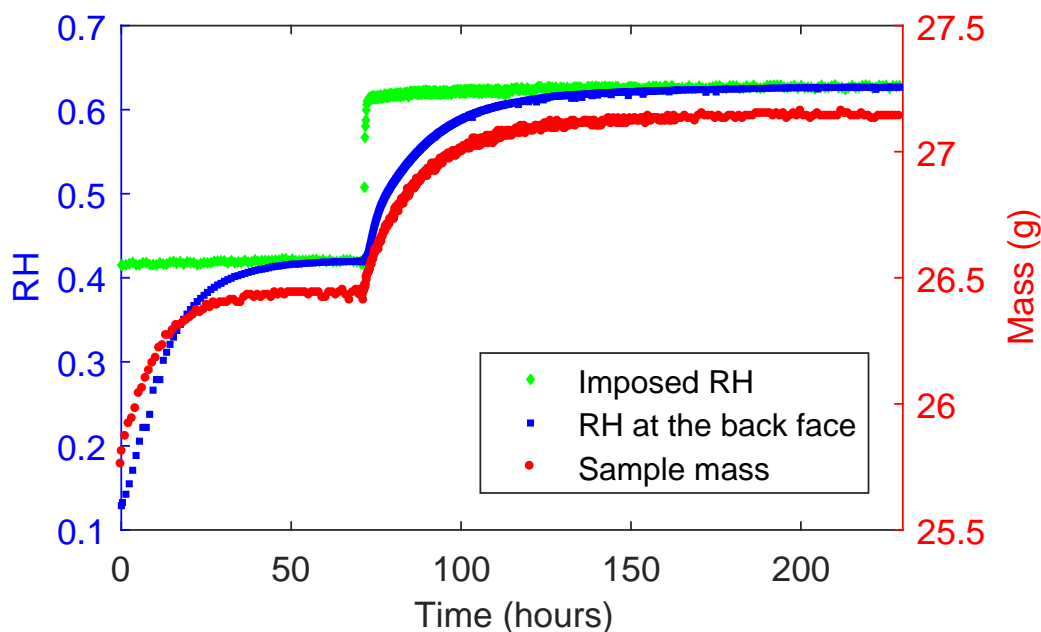


Figure 7: Example of raw data obtained for MDF

experiment). In the first experiment, materials with a lower macroscopic diffusive time were tested: 20-mm-thick LDF with a density of $145 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ and 10-mm-thick LDF with a density of $255 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. In the second experiment, 19-mm-thick LDF with a density of $234 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ and MDF were tested. To avoid hysteresis effects and yet ensure the reproducibility of the experiment, samples were first dried in a desiccator at room temperature to a RH close to zero using a nitrogen flow. The samples were then placed in their support inside the experimental device and data acquisition was performed. The presented experiment consists of two isothermal periods (35°C):

- a plateau at 40% RH until stabilization of the mass and RH on the back faces and
- a plateau at 60% RH after a sudden increase in the RH to this new value until stabilization of the mass and RH on the back faces.

The acquisition rate is adapted during the test from a rapid rate after the sudden change in the RH of the chamber to slower rates as the samples approach equilibrium. Typically, during the first stabilization plateau, the rate is one acquisition per hour. This rate increases to one acquisition every 8 min for the first 24 h after the sudden change in RH, every 16 min until 72 h, and then once every hour again. Examples of raw data are plotted in Fig. 7.

2.7. *Determination of the external heat transfer coefficient*

The H&M coefficients between the sample surface and the climatic chamber play a role in the global resistance to H&M transfer [25]. Consequently, their effect may interfere with the internal resistances in the identification procedure. To be consistent with

our predictive strategy, we decided to experimentally determine the resistance to H&M transfer at the interface rather than make an indirect determination by inverse analysis. As it was shown in [39], the proper consideration of external transfers is important to correctly consider the H&M coupling inside the sample. Provided that heat and mass transfer are analogous in the boundary layer [40], the heat transfer coefficient can be deduced from the drying rate during the constant drying rate (CDR) period provided this period is long enough so that a steady temperature field can be assumed [41]. Obviously, as the transfer coefficients depend on the configuration (velocity and geometry), the experimental configuration must be exactly the same as in the actual experiments. To ensure this constraint while obtaining a long CDR period, a polyvinyl chloride (PVC) disk was covered on its front face with a sponge saturated with water and placed in the sample support. During a well-established CDR period, the product is at constant temperature and the heat flux is just used for water evaporation. If one assumes the heat transfer coefficient h to be the same on both sides of the sample, the energy balance during a steady CDR period reads as

$$L_v Q_v = S(h + (h^{-1} + \ell/\lambda)^{-1})(T_d - T_w), \quad (1)$$

where L_v is the latent heat of vaporization of water, Q_v is the drying rate determined by weighing, S is the surface area of the sample, λ is the thermal conductivity of PVC, ℓ is the thickness of the PVC disk, T_w is the wet bulb temperature, and T_d is the dry bulb temperature. Using Equation (1) during a well-established CDR period allowed the value of h to be determined ($h = 8.9 \text{ W} \cdot \text{K}^{-1}$). This value will be used in what follows as an input parameter. Consistently, the same value, together with the thermal resistance of the PVC disk, is used on the back face of the sample.

3. Theoretical model

3.1. Memory functions

Memory effects occurring in biosourced materials are explained by two additional effects: possible dual-scale phenomena arising when the conductive phase is not the storage phase and molecular relaxation arising at the macromolecular level. In a theoretical paper [23], we proved that both effects could be transferred as additive effects at the macroscopic scale. Based on this result, the cumulative memory function was characterized from experiments performed on minute samples [26]. The global memory function $\varphi(t)$ is defined as the evolution of the moisture content (water in the storage phase) after a sudden change from RH_{ini} to RH_{fin} . Given that, in practical situations, RH varies continuously rather than stepwise, the variation of moisture content should be expressed through a convolution product:

$$X(t) - X_{\text{ini}} = \int_0^t \varphi(t - \tau) \frac{\partial X_{\text{eq}}}{\partial \tau} d\tau, \quad (2)$$

where X is the moisture content and X_{eq} is the equilibrium moisture content, defined by water activity. In Equation (2),

$$\frac{\partial X_{\text{eq}}}{\partial \tau} d\tau = dX_{\text{eq}} \quad (3)$$

Material	α_1	τ_1 (s)	α_2	τ_2 (s)
LDF	0.38	3.2×10^3	0.13	2.6×10^4
MDF	0.45	2.3×10^3	0.02	4.1×10^4

Table 1: Values of the coefficients defining the memory function for both materials (identified in [26])

represents the variation of equilibrium moisture content during the infinitesimal time interval $d\tau$.

To facilitate the computational solution, the function $\varphi(t)$ was defined with the following expression:

$$\varphi(t) = 1 - \alpha_1 \exp(-t/\tau_1) - \alpha_2 \exp(-t/\tau_2), \quad (4)$$

where τ_1 and τ_2 are the time constants and α_1 and α_2 are the respective proportions. The use of the exponential function allows the convolution product to be treated by internal variables defined by simple ordinary differential equations [23]. Because LDF and MDF do not have the same composition, the values are different. For both materials, the parameter values of the memory function, as determined for an RH jump from 40% to 60% in [26], are summarized in Table 1. These values were used as input data in all simulations of the present work.

3.2. Macroscopic formulation

The macroscopic formulation that was used in this work is based on a classical set of equations that account for coupled heat and mass transfer in porous media. More details about these equations can be found in [24, 25]. These equations were modified to account for the absence of thermodynamic equilibrium [23]. In the new formulation, Equation (2) is used to express the derivative of moisture content with respect to time. Therefore, the set of macroscopic equations becomes

moisture conservation:

$$\rho_s \frac{\partial}{\partial t} \left(\int_0^t \varphi(t-\tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau \right) + \nabla \cdot (\rho_v \bar{\mathbf{v}}_g) = \nabla \cdot (\rho_g \mathbf{f} \mathbf{D}_v \cdot \nabla \omega_v), \quad (5)$$

energy conservation:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_g (\rho_v h_v + \rho_a h_a) + \bar{\rho}_b \bar{h}_b + \varepsilon_s \rho_s h_s) \\ + \nabla \cdot ((\rho_v h_v + \rho_a h_a) \bar{\mathbf{v}}_g) \\ = \nabla \cdot (\lambda_{eff} \nabla T + \rho_g \mathbf{f} \mathbf{D}_v (h_v \nabla \omega_v + h_a \nabla \omega_a)), \end{aligned} \quad (6)$$

air conservation:

$$\frac{\partial (\varepsilon_g \rho_a)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_a \bar{\mathbf{v}}_g) = \nabla \cdot (\rho_g \mathbf{f} \mathbf{D}_v \nabla \omega_a), \quad (7)$$

transport equations:

$$\bar{\mathbf{v}}_g = -\frac{\mathbf{K} \mathbf{k}_g}{\mu_g} (\nabla p_g - \rho_g \nabla \psi_g), \quad (8)$$

and

boundary conditions:

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_w|_{x=0^+} \cdot \mathbf{n} &= k c M_v \ln \left(\frac{1 - x_\infty}{1 - x_v|_{x=0}} \right) \\ \mathbf{J}_q|_{x=0^+} \cdot \mathbf{n} &= h (T|_{x=0} - T_\infty) \\ P_g|_{x=0^+} &= P_{atm}. \end{aligned} \quad (9)$$

One should note that the value of the partial pressure of water vapor is related to the equilibrium moisture content X_{eq} through the sorption isotherm (or water activity) $p_v = p_{vs}(T) \times a_w(T, X_{eq})$.

The comprehensive set of equations proposed in [23] was adapted to the configuration of interest, hence simplified, by use of the following assumptions:

- Because the samples remain in the hygroscopic domain, all liquid water contributions have been discarded.
- Owing to the particular morphology of the studied materials, a very large majority of the transfer occurs in the gaseous phase. Consequently, the transport terms of bound water have also been discarded.
- The effective diffusivity is expressed as a proportion of the binary diffusivity of vapor in air: $\mathbf{D}_{eff} = \mathbf{f} \mathbf{D}_v$, where \mathbf{f} is a dimensionless diffusivity tensor. Note that, along one given direction, $f = 1/\mu$, where μ is the *vapor resistance ratio* used for building materials.

By using a suitable computational strategy, this set of equations is able to simulate the coupling between heat and mass occurring during transfer in building materials while taking into account the absence of thermodynamic equilibrium. It allows three independent variables to be computed in space and in time (for example, temperature or enthalpy, moisture content, and air density or gaseous pressure).

3.3. Inverse analysis

The principle of the inverse procedure is to feed the computational code with known parameters and to determine the unknown parameters by minimizing an objective function. As our intent is to prove the prediction potential of the new formulation, only two parameters were identified: the initial moisture content X_{ini} , identified only to reduce the residue, and the dimensionless diffusivity f , whose identification results in a characterization of the material. The sample characteristics (thickness, density, and porosity) were simply measured and supplied to the computation code. The sorption isotherm and the effective permeability come from recent papers [32, 42]. The thermal conductivity is determined by a mixture law using the gaseous and solid volume fractions and their conductivities [43]. The relevance of the value given by this law was confirmed in [39]. Using the actual chamber conditions (temperature and RH) recorded during the test and the external heat transfer coefficients as determined in Section 2.7, the physical model computes all variable fields versus time. It is therefore able to give the mean water content of the sample X and the RH at its back face. This allows two objective functions

S_X and S_{RH} to be derived to quantify the difference between experimental and predicted values using the mean square distance as a norm:

$$S_X = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N [X_{exp}^*(t_i) - X_{pred}^*(t_i)]^2}{N}}, \quad (10)$$

$$S_{RH} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N [\text{RH}_{exp}(t_i) - \text{RH}_{pred}(t_i)]^2}{N}}, \quad (11)$$

where X_{exp}^* is the dimensionless moisture content from the experiment, X_{pred}^* is the dimensionless moisture content predicted with estimated parameters, RH_{exp} is the experimental value of RH, RH_{pred} is predicted value of RH, t_i is the time of the i th acquisition, and N is the number of instants used in the minimization. The dimensionless value of moisture content was used to correct the small differences that may appear between the sorption isotherm supplied to the code and the equilibrium moisture content obtained for each individual sample. By being accurately defined here owing to the long duration of our experiments, it varies from 0 for the equilibrium moisture content at RH_{ini} to 1 for the equilibrium moisture content at RH_{fin} .

The global objective function S is a linear combination of those two functions:

$$S = \beta \times S_X + (1 - \beta) \times S_{RH}. \quad (12)$$

A value of $\beta = 0.2$ was used as the best compromise between the two variables. It corrects for the difference in the variation ranges of the two variables (0.2 for RH and 1 for the dimensionless moisture content). A Nedler–Mead algorithm was used to minimize this objective function and find the best set of parameters (X_{ini} and f). Here, the identification starts 5 h before the RH jump. At this moment, the moisture content is already stabilized at its equilibrium value. The identification ends 50 h after the perturbation for two more diffusive samples and 150 h after for the less diffusive samples. In both cases, the samples were almost at equilibrium.

4. Results and discussion

Without memory effects, the simulation uses a classical, yet comprehensive, set of coupled H&M equations. In the case of LDF at $145 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, the most diffusive material, the RH information travels very fast from the climatic chamber to the sample core, faster than diffusion inside fibers. Dual-scale effects are obvious and it is not possible to fit the two pieces of information (RH_{back} and X) simultaneously. The identification procedure simply tries to decrease the global objective function by reaching a compromise between the two variables. As a result, the RH evolution is too slow and the moisture content evolution is too fast (green curves in Fig. 8). With an average value of 0.332, the dimensionless factor identified without memory effects is lower than the published values for this material, either measured in steady-state experiments [20, 31] or predicted by upscaling from the real pore morphology [43].

In contrast, when using the new formulation with the memory effect, the model is in very good agreement with the experimental data for both RH and moisture content

Material	Sample	Formulation	f	S_{RH}	S_X
LDF 20 mm $145 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$	A	Classic	0.366	1.62×10^{-2}	2.90×10^{-2}
		With memory	0.667	2.11×10^{-3}	2.09×10^{-2}
	B	Classic	0.298	1.92×10^{-2}	3.65×10^{-2}
		With memory	0.480	3.17×10^{-3}	2.32×10^{-2}
LDF 10 mm $255 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$	A	Classic	0.171	1.94×10^{-2}	3.55×10^{-2}
		With memory	0.306	2.94×10^{-3}	2.68×10^{-2}
	B	Classic	0.169	2.25×10^{-2}	4.08×10^{-2}
		With memory	0.302	6.00×10^{-3}	2.70×10^{-2}
LDF 19 mm $234 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$	A	Classic	0.347	1.34×10^{-2}	2.55×10^{-2}
		With memory	0.478	2.95×10^{-3}	2.15×10^{-2}
	B	Classic	0.267	1.93×10^{-2}	4.29×10^{-2}
		With memory	0.341	8.41×10^{-3}	3.32×10^{-2}
MDF 10 mm $655 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$	A	Classic	0.0497	1.81×10^{-2}	3.55×10^{-2}
		With memory	0.0482	1.79×10^{-2}	2.50×10^{-2}
	B	Classic	0.0785	2.23×10^{-2}	3.12×10^{-2}
		With memory	0.0752	1.82×10^{-2}	2.80×10^{-2}

Table 2: Identified diffusivity and residues with or without memory functions

(blue curves in Fig. 8). Owing to the memory effects, the identified diffusivity (with an average value of 0.573) is now consistent with literature data, even though the experiment is performed in the transient state. Keeping in mind that the memory functions were not identified but measured on minute samples, we can conclude that these good results (simultaneous prediction of two variables and a consistent value of f) confirm that the new formulation perfectly accounts for all important physical phenomena. In particular, it includes the coupling between heat and mass transfer and the fading memory resulting from dual-scale effects and molecular relaxation.

For each sample, the identification of the effective diffusivity was performed without and with memory effects. The identified dimensionless diffusivities f as well as the residues between the model and the experiment for RH (S_{RH}) and dimensionless moisture content (S_X) are summarized in Table 2. To focus on the transient period during which the formulation matters, the residues were calculated over the first hours after the RH step (20 h for the two most diffusive materials and 35 h for the others). In general, the residues are dramatically reduced when using the memory function with average decreases by a factor 7 for S_{RH} and 1.5 for S_X . The lower factor obtained for S_X is partly explained by the noise of the experimental mass. Nonetheless, as the additional information embedded in the new formulation is not an additional degree of freedom, these good results confirm the previous comment regarding the 20-mm-thick LDF sample. It demonstrates that the observed phase shift originates from the microscopic diffusive behavior and validates the new formulation.

The results obtained for the 10-mm-thick LDF samples with a density of $255 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ depict the same trend (Fig. 9). Once again, the classic formulation is not able to fit both quantities whereas the fit is excellent when using the memory function. In spite of the change in density and morphology, the same memory function works perfectly. This

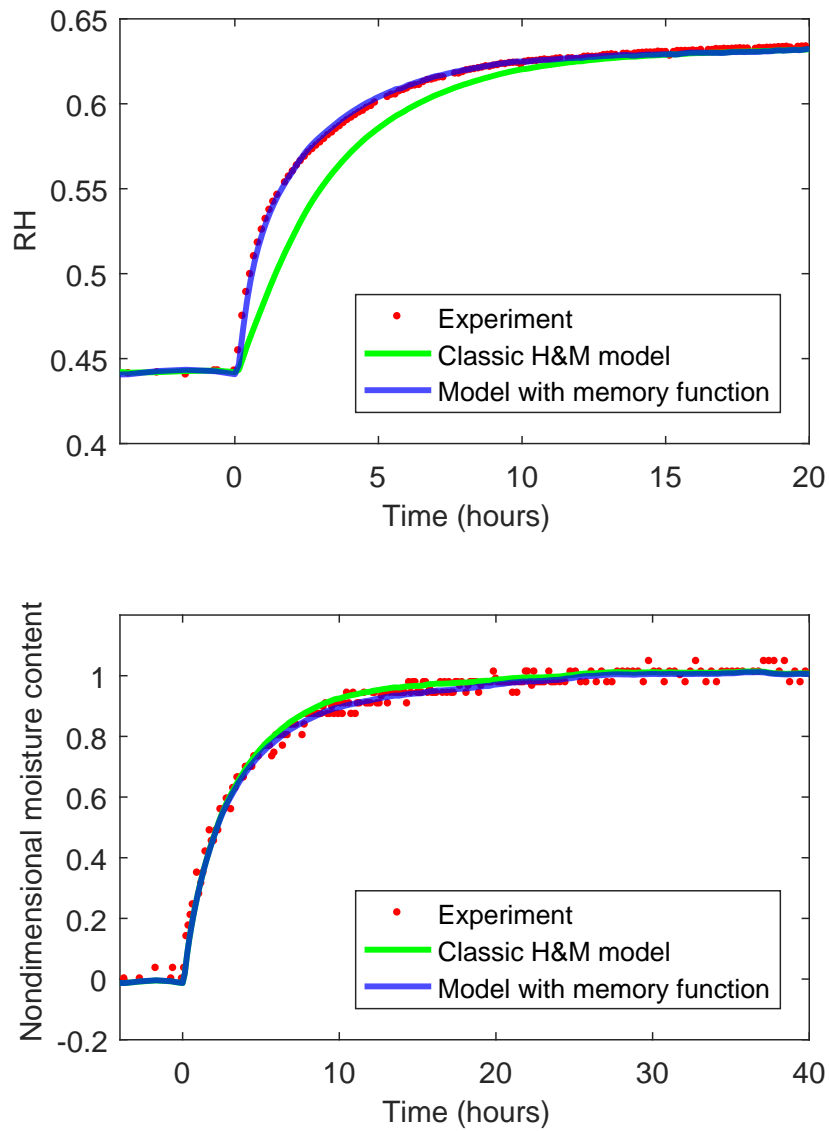


Figure 8: Comparison between simulation and experiment for sample A of LDF (20 mm; $145 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$): (top) RH evolution at the back face; (bottom) dimensionless average moisture content

is consistent as, whatever its density, LDF has the same microscopic composition. This also proves that the memory functions are representative of microscopic effects, which just need to be characterized once. Besides, the morphology influences the macroscopic behavior: With an average value of 0.304, the identified diffusivities are lower for this material than for the previous one. Again, it is in good agreement with what was measured for similar materials [20]. The reduction of residues when accounting for memory effects is similar to that for the previous material (by factors of 5 for S_{RH} and 1.4 for S_X).

Similar comments apply to the 19-mm-thick LDF sample with a density of $234 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ (Fig. 10). Again, the agreement is excellent with memory effects. The average value of the identified diffusivity (0.409) lies between the two previous ones, which is consistent with the material densities. However, one can note that, even though the residues are still lower when using the memory function, the difference between the two simulations is less important than for the 10-mm-thick samples (with reducing factors of 3.4 for S_{RH} and 1.3 for S_X). The memory effect is then less important in this case. Because this macroscopic diffusive time increases as the thickness squared and with the smaller f value compared with $145 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ LDF samples, more time is allowed for the fiber to approach equilibrium. The dual-scale mechanisms progressively vanished at increasing thickness. A further increase of the thickness would have also reduced the effect of molecular relaxation (the longest time constant of Table 1). In spite of this fact, the use of memory functions still considerably ameliorates the results at short times. This is of great interest for building materials subjected to day and night alternation.

In the case of MDF, the simulation results with or without memory effects are similar (Fig. 11). When using the memory functions, the average residues only decrease by 9% for S_{RH} and 20% for S_X . This is not surprising as the high density of MDF dramatically reduces the diffusion at the macroscopic level: The average f value (0.063) is one order of magnitude lower than those obtained for LDF. Consequently, even with a thickness of 10 mm, the macroscopic characteristic time is long enough to ensure local equilibrium. However, one must note that the model does not fit the experimental RH values. Even with memory effects, the residues remain important compared to those of the previous materials. Based on our predictive approach, one can affirm that this discrepancy cannot be explained by microscopic effects, as those effects are embedded in the memory function determined on minute samples. Therefore, the origin of this difference has yet to be explained, formulated, and predicted. As MDF is a structural material, we believe that the stress profile along its thickness could be the explanation: During adsorption, swelling occurs at the surface while the sample core is still close to the initial moisture content with little dimensional change. Depending on the mechanical behavior, the external part of the sample is therefore under compression and the sample core under tension [44]. In addition, compressive stress or constrained deformations are known to decrease the equilibrium moisture content of wood or lignocellulosic products [45, 46, 47, 48]. This coupling between local scale (stress field on the sorption isotherm) and global scale (stress profile along the sample thickness) is likely to give rise to another effect able to produce a fading or permanent memory. Its time constant would be tied to the macroscopic parameters, including thickness, while its amplitude would be tied to both macroscopic and microscopic effects. This could explain the very long time constant observed in wood

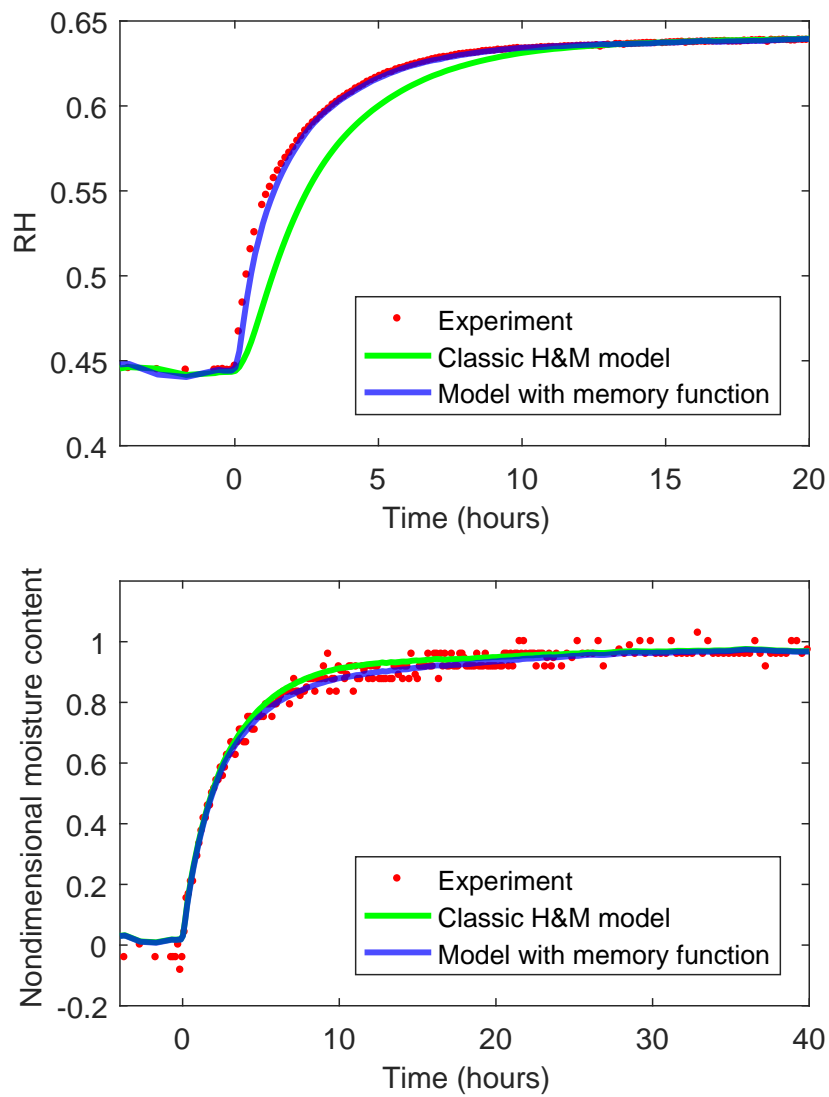


Figure 9: Comparison between simulation and experiment for sample A of LDF (10 mm; $255 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$): (top) RH evolution at the back face; (bottom) dimensionless average moisture content

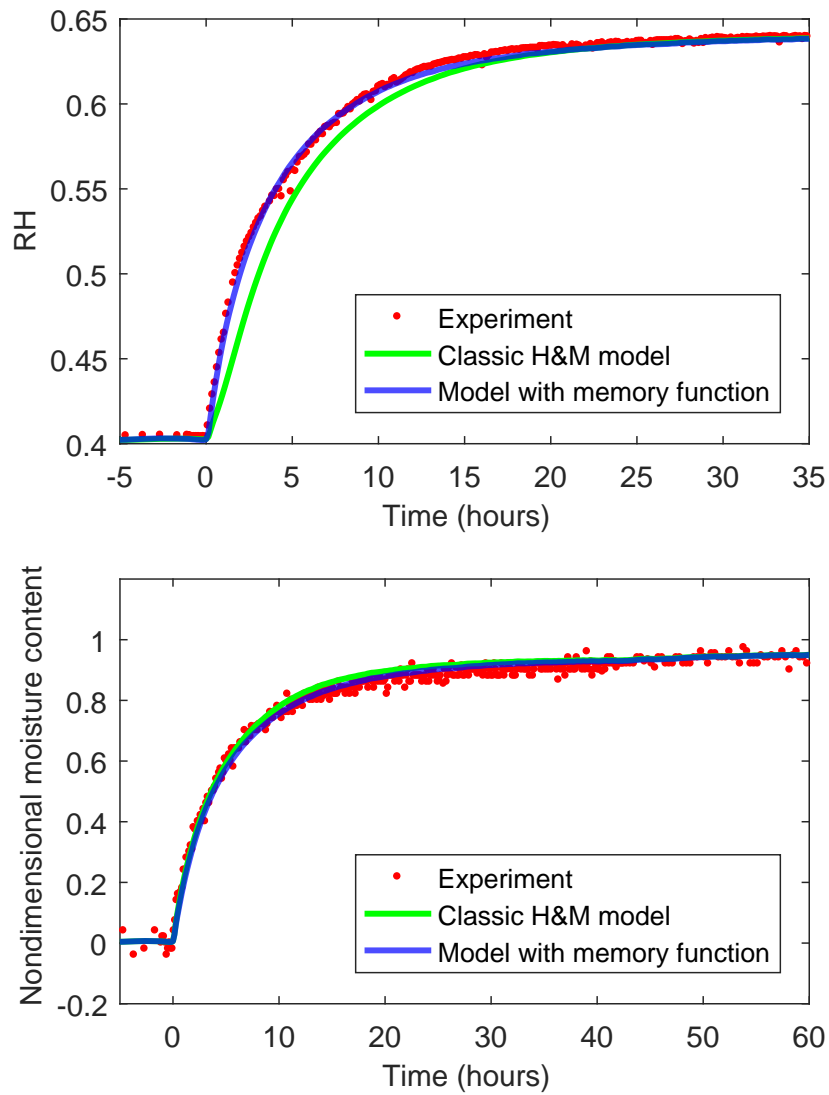


Figure 10: Comparison between simulation and experiment for sample A of LDF (19 mm; $234 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$): (top) RH evolution at the back face; (bottom) dimensionless average moisture content (bottom).

for example [49].

5. Conclusion and perspectives

This work is based on experimental results obtained with an original in-house device. This device was conceived to control the environment (temperature and RH) and to follow the evolution of several samples by measuring simultaneously the RH on their back face and their mass. Results are presented for LDF samples of different densities and thicknesses and for MDF samples. The experimental results were analyzed by using an inverse method with a comprehensive H&M model with non-Fickian effects. The following conclusions can be drawn:

- A classic H&M model cannot correctly predict the evolution of both RH and moisture content for those materials, which denotes the presence of nonlocal equilibrium.
- For LDF, the model using the new formulation remarkably predicts the evolution of both quantities when it is fed with memory functions determined on microsamples.
- This novel and validated formulation allows the materials to be accurately characterized in the transient state.

This work proves that the new formulation with non-Fickian effects is able to predict the diffusive behavior of biosourced materials. This formulation should be used either at the laboratory scale for characterization or at the building scale to predict energy demand.

References

- [1] Y. Florentin, D. Pearlmutter, B. Givoni, E. Gal, A life-cycle energy and carbon analysis of hemp-lime bio-composite building materials, *Energy and Buildings* 156 (2017) 293–305. doi:10.1016/j.enbuild.2017.09.097.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.enbuild.2017.09.097>
- [2] P. Pawelzik, M. Carus, J. Hotchkiss, R. Narayan, S. Selke, M. Wellisch, M. Weiss, B. Wicke, M. K. Patel, Critical aspects in the life cycle assessment (LCA) of bio-based materials - Reviewing methodologies and deriving recommendations, *Resources, Conservation and Recycling* 73 (2013) 211–228. doi:10.1016/j.resconrec.2013.02.006.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.resconrec.2013.02.006>
- [3] D. Peñaloza, M. Erlandsson, A. Falk, Exploring the climate impact effects of increased use of bio-based materials in buildings, *Construction and Building Materials* 125 (2016) 219–226. doi:10.1016/j.conbuildmat.2016.08.041.
- [4] A. D. La Rosa, A. Recca, A. Gagliano, J. Summerscales, A. Latteri, G. Cozzo, G. Cicala, Environmental impacts and thermal insulation performance of innovative composite solutions for building applications, *Construction and Building Materials* 55 (2014) 406–414. doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.01.054.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.01.054>

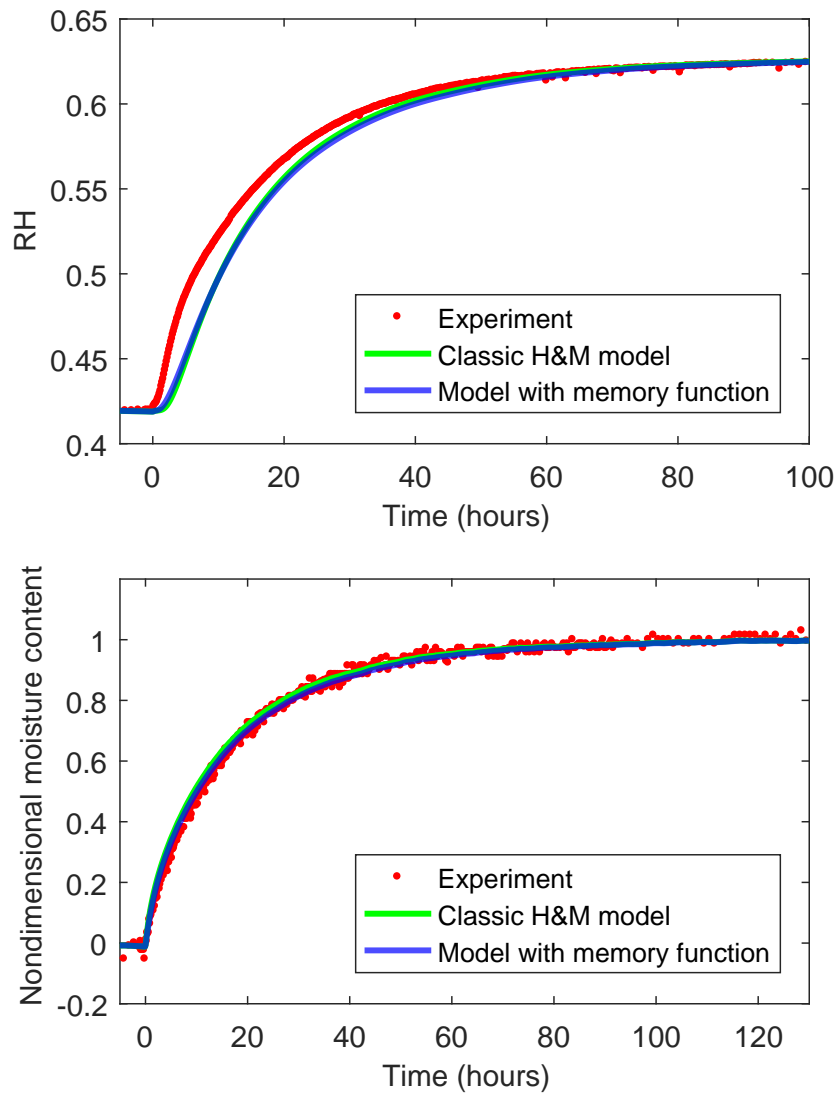


Figure 11: Comparison between simulation and experiment for sample A of MDF (10 mm; $655\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$): (top) RH evolution at the back face; (bottom) dimensionless average moisture content

- [5] O. F. Osanyintola, C. J. Simonson, Moisture buffering capacity of hygroscopic building materials: Experimental facilities and energy impact, *Energy and Buildings* 38 (10) (2006) 1270–1282. doi:10.1016/j.enbuild.2006.03.026.
URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378778806000855>
- [6] M. Woloszyn, T. Kalamees, M. O. Abadie, M. Steeman, A. Sasic Kalagasidis, The effect of combining a relative-humidity-sensitive ventilation system with the moisture-buffering capacity of materials on indoor climate and energy efficiency of buildings, *Building and Environment* 44 (3) (2009) 515–524. doi:10.1016/j.buildenv.2008.04.017.
- [7] J. A. Orosa, A. Baaliña, Improving PAQ and comfort conditions in Spanish office buildings with passive climate control, *Building and Environment* 44 (3) (2009) 502–508. doi:10.1016/j.buildenv.2008.04.013.
URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0360132308000759>
- [8] J. Jacques, M. Labat, M. Woloszyn, Dynamic coupling between vapour and heat transfer in wall assemblies : Analysis of measurements achieved under real climate, *Building and Environment* 87 (2015) 129–141. doi:10.1016/j.buildenv.2015.01.022.
- [9] T. Kalamees, J. Vinha, Hygrothermal calculations and laboratory tests on timber-framed wall structures, *Building and Environment* 38 (5) (2003) 689–697. doi:10.1016/S0360-1323(02)00207-X.
- [10] H. Künzeli, A. Holm, D. Zirkelbach, A. Karagiozis, Simulation of indoor temperature and humidity conditions including hygrothermal interactions with the building envelope, *Solar Energy* 78 (4) (2005) 554–561. doi:10.1016/j.solener.2004.03.002.
URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0038092X04000507>
- [11] L. Wang, H. Ge, Hygrothermal performance of cross-laminated timber wall assemblies: A stochastic approach, *Building and Environment* 97 (2016) 11–25. doi:10.1016/j.buildenv.2015.11.034.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.buildenv.2015.11.034>
- [12] C. Spitz, L. Mora, E. Wurtz, A. Jay, Practical application of uncertainty analysis and sensitivity analysis on an experimental house, *Energy and Buildings* 55 (2012) 459–470. doi:10.1016/j.enbuild.2012.08.013.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.enbuild.2012.08.013>
- [13] T. Duforestel, Des transferts couplés de masse et de chaleur à la conception bioclimatique: recherches sur l’efficacité énergétique des bâtiments, *Mémoire HDR* (2015) 241.
- [14] J. Kwiatkowski, M. Woloszyn, J.-J. Roux, Modelling of hysteresis influence on mass transfer in building materials, *Building and Environment* 44 (2009) 633–642. doi:10.1016/j.buildenv.2008.05.006.
- [15] R. Rémond, G. Almeida, P. Perré, The gripped-box model: A simple and robust formulation of sorption hysteresis for lignocellulosic materials, *Construction and Building Materials* 170 (2018) 716–724. doi:10.1016/j.conbuildmat.2018.02.116.

- [16] K. Krabbenhoft, L. Damkilde, Double porosity models for the description of water infiltration in wood, *Wood Science and Technology* 38 (2004) 641–659. doi:10.1007/s00226-004-0253-5.
- [17] U. Nyman, P. J. Gustafsson, B. Johannesson, R. Hägglund, A numerical method for the evaluation of non-linear transient moisture flow in cellulosic materials, *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 66 (2006) 1859–1883. doi:10.1002/nme.1597.
- [18] P. Perré, Multiscale aspects of heat and mass transfer during drying, *Transport in Porous Media* 66 (1-2) (2007) 59–76. doi:10.1007/s11242-006-9022-2.
- [19] P. Perre, Multiscale Modeling of Drying as a Powerful Extension of the Macroscopic Approach: Application to Solid Wood and Biomass Processing, *Drying Technology* 28 (8) (2010) 944–959. doi:Doi 10.1080/07373937.2010.497079.
- [20] R. Rémond, G. Almeida, Mass diffusivity of low-density fibreboard determined under steady- and unsteady-state conditions : Evidence of dual-scale mechanisms in the diffusion, *Wood Material Science and Engineering* 6:1-2 (2011) 23–33. doi:10.1080/17480272.2010.515035.
- [21] A. Challansonnex, F. Pierre, J. Casalinho, P. Lv, P. Perré, Mass diffusivity determination of various building materials based on inverse analysis of relative humidity evolution at the back face of a sample, *Construction and building materials* 38 (2018) 539–546.
- [22] D. Lelievre, T. Colinart, P. Glouannec, Hygrothermal behavior of bio-based building materials including hysteresis effects: Experimental and numerical analyses, *Energy and Buildings* 84 (2014) 617–627. doi:10.1016/j.enbuild.2014.09.013. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.enbuild.2014.09.013>
- [23] P. Perré, Coupled heat and mass transfer in biosourced materials : a macroscopic formulation with non-Fickian effects adapted to computational simulation., Submitted.
- [24] P. Perré, I. W. Turner, A 3-D version of TransPore: a comprehensive heat and mass transfer computational model for simulating the drying of porous media, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 42 (24) (1999) 4501–4521. doi:10.1016/S0017-9310(99)00098-8. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931099000988>
- [25] P. Perré, The Proper Use of Mass Diffusion Equations in Drying Modeling : Introducing the Drying Intensity Number, *Drying Technology* 33 (15-16) (2015) 1949–1962. doi:10.1080/07373937.2015.1076836. URL <http://dx.doi.org/10.1080/07373937.2015.1076836>
- [26] A. Challansonnex, J. Casalinho, P. Perré, Non-Fickian diffusion in bio-based materials : experimental determination of the memory function using minute samples, Submitted.

- [27] O. Suchsland, G. E. Woodson, *Fiberboard manufacturing Practices In the United States*, U.S. Government printing office, 1986.
- [28] T. Kawasaki, M. Zhang, S. Kawai, Manufacture and properties of ultra-low-density fiberboard, *Journal of wood sciences* 44 (1998) 354–360.
- [29] Ł. Czajkowski, W. Olek, J. Weres, R. Guzenda, Thermal properties of wood-based panels : specific heat determination, *Wood Science and Technology* 50 (3) (2016) 537–545. doi:10.1007/s00226-016-0803-7.
- [30] J. Lux, A. Ahmadi, C. Gobbe, C. Delisée, Macroscopic thermal properties of real fibrous materials : Volume averaging method and 3D image analysis, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49 (2006) 1958–1973. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.09.038.
- [31] O. Vololonirina, M. Coutand, B. Perrin, Characterization of hygrothermal properties of wood-based products - Impact of moisture content and temperature, *Construction and Building Materials* 63 (2014) 223–233. doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.04.014>
- [32] G. Almeida, R. Rémond, P. Perré, Hygroscopic behaviour of lignocellulosic materials: Dataset at oscillating relative humidity variations, *Journal of Building Engineering* 170 (2018) 716–724.
- [33] S. Ganey, R. Beauregard, G. Gendron, Effect of pannel moisture content and density on moisture movement in MDF, *Wood and Fiber Science* 35 (1) (2003) 68–82.
- [34] W. Sonderegger, P. Niemz, Thermal conductivity and water vapour transmission properties of wood-based materials, *European Journal of Wood and Wood Products* 67 (3) (2009) 313–321. doi:10.1007/s00107-008-0304-y. URL <http://link.springer.com/10.1007/s00107-008-0304-y>
- [35] X. P. Ye, J. Julson, M. Kuo, A. Womac, D. Myers, Properties of medium density fiberboards made from renewable biomass, *Bioresource Technology* 98 (5) (2007) 1077–1084. doi:10.1016/j.biortech.2006.04.022.
- [36] S. Zohoun, E. Agoua, G. Degan, P. Perré, An experimental correction proposed for an accurate determination of mass diffusivity of wood in steady regime, *Heat and Mass Transfer* 39 (2) (2003) 147–155. doi:10.1007/s00231-002-0324-9.
- [37] E. Agoua, S. Zohoun, P. Perré, A double climatic chamber used to measure the diffusion coefficient of water in wood in unsteady-state conditions: Determination of the best fitting method by numerical simulation, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 44 (19) (2001) 3731–3744. doi:10.1016/S0017-9310(01)00022-9.
- [38] P. Perré, F. Pierre, J. Casalinho, M. Ayouz, Determination of the Mass Diffusion Coefficient Based on the Relative Humidity Measured at the Back Face of the Sample during Unsteady Regimes, *Drying Technology* 33:9 (2015) 1068–1075. doi:10.1080/07373937.2014.982253.

- [39] P. Perré, A. Challansonnex, J. Colin, On the importance of heat and mass transfer coupling for the characterization of hygroscopic insulation materials, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 133 (2019) 968–975.
- [40] R. Byron Bird, W. E. Stewart, E. N. Lightfoot, *Transport phenomena*, 2nd Edition, John Wiley & Sons, New York, 2002.
- [41] P. Perré, B. May, The existence of a first drying stage for potato proved by two independent methods, *Journal of Food Engineering* 78 (4) (2007) 1134–1140. doi:10.1016/j.jfoodeng.2005.12.025.
- [42] W. Ai, H. Duval, F. Pierre, P. Perré, A novel device to measure gaseous permeability over a wide range of pressures: Characterisation of slip flow for Norway spruce, European beech, and wood-based materials, *Holzforschung* 71 (2) (2016) 147–162.
- [43] M. Louërat, M. Ayouz, P. Perré, Heat and moisture diffusion in spruce and wood panels computed from 3-D morphologies using the Lattice Boltzmann method, *International Journal of Thermal Sciences* 130 (2018) 471–483. doi:10.1016/j.ijthermalsci.2018.05.009.
URL <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2018.05.009>
- [44] P. Perré, J. Passard, A physical and mechanical model able to predict the stress field in wood over a wide range of drying conditions, *Drying Technology* 22 (1-2) (2004) 27–44.
- [45] M. Goulet, Phénomènes de second ordre de la sorption d’humidité dans le bois au terme d’un conditionnement de trois mois à température normale. Seconde partie : Essais du bois d’érable à sucre en compression radiale., Note de recherche n°3, Université Laval, Québec, Canada (1968).
- [46] W. T. Simpson, Moisture changes induced in red oak by transverse stress, *Wood and Fiber Science* 3 ((1)) (2007) 13–20.
- [47] A. Mårtensson, Mechano-sorptive effects in wooden material, *Wood Science and Technology* 28 (6) (1994) 437–449. doi:10.1007/BF00225463.
- [48] N. Bhourri, S. Bennasrallah, P. Perre, Influence of geometrical structure on sorption isotherms of jersey and yarns made of cotton at two temperatures, *Microporous and Mesoporous Materials* 163 (2012) 76–84.
- [49] L. Wadsö, Describing non-Fickian water-vapour sorption in wood, *Journal of Materials Science* 29 (9) (1994) 2367–2372. doi:10.1007/BF00363428.

Conclusions générales et perspectives

Ce travail de thèse s'inscrit dans le contexte de la construction durable. En effet, la volonté de réduire l'impact environnemental des bâtiments devrait amener à une utilisation de plus en plus importante des matériaux biosourcés, ceux-ci ayant un impact carbone plus faible que les matériaux traditionnels. En parallèle, la volonté de limiter les consommations énergétiques de ces mêmes constructions nécessite de pouvoir les prédire de façon fiable. Cependant, diverses études ont montré que l'utilisation des biosourcés impliquait des différences importantes entre simulations numériques et résultats expérimentaux. Ces différences ont plusieurs origines possibles et constituent actuellement un axe de recherche significatif dans la communauté scientifique travaillant sur ces thématiques. Elles sont par ailleurs particulièrement importantes pour les matériaux fibreux destinés à l'isolation tels que les panneaux de fibres de faible densité. Dans ce travail, ces matériaux ont été particulièrement étudiés sous le prisme de deux phénomènes majeurs :

- l'influence du couplage chaleur/masse
- l'absence d'équilibre local

Concernant le couplage chaleur/masse, nous avons vu que son influence était exacerbée pour les matériaux hygroscopiques fibreux. Conséquemment, comme cela a pu être montré grâce à une expérience originale et des simulations, une mauvaise prise en compte du phénomène peut aboutir à d'importantes erreurs lors de la caractérisation de ces matériaux. En particulier, l'influence de la conductivité thermique sur la dynamique des transferts de masse en régime transitoire a été soulignée. Par ailleurs, nous avons constaté que la mauvaise prise en compte des transferts de chaleur externes pouvait largement fausser l'interprétation des résultats expérimentaux. Les conclusions obtenues lors de cette étude sur les couplages ont ainsi pu être utilisées dans la suite du travail de thèse. En particulier, elles ont été appliquées à une méthode d'identification de la diffusivité massique de matériaux de construction utilisant l'évolution de l'humidité relative en face arrière d'un échantillon.

Concernant le phénomène de non-équilibre local, une nouvelle formulation permettant de le prendre en compte a été proposée. Elle se base sur l'utilisation de fonctions

mémoires qui caractérisent le comportement diffusif microscopique des fibres végétales composant le matériau. Cette formulation est vouée à être utilisée dans des codes de thermique du bâtiment. Elle peut ainsi prendre en compte le couplage chaleur/masse et n'induit pas de temps de calcul trop longs. Durant ce travail de thèse, une version du code *Transpore*, dans laquelle cette formulation est implémentée, a été utilisée.

Les fonctions mémoires ont ensuite été déterminées expérimentalement sur trois matériaux biosourcés : du LDF, du MDF et de l'épicéa dans la direction longitudinale. Pour ce faire, des essais gravimétriques d'adsorption ont été réalisés sur de très petits échantillons. En effet, de cette manière les effets macroscopiques étaient négligeables devant les effets microscopiques. Par ailleurs, le comportement diffusif microscopique étant à priori dépendant de l'humidité relative ambiante, une large plage d'humidité a été étudiée. Les résultats expérimentaux ont été utilisés dans une procédure inverse avec le code modifié. Il a été constaté qu'en utilisant la nouvelle formulation, les simulations approchent très bien les résultats expérimentaux. Au contraire, sans l'utilisation de fonctions mémoires, les simulations ne capturent pas la physique du transfert.

En parallèle, un nouveau dispositif expérimental a été conçu. Il permet de soumettre un échantillon de quelques centimètres d'épaisseur à une perturbation de l'humidité relative sur sa face avant tout en enregistrant simultanément l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière ainsi que de sa teneur en eau moyenne via sa masse. Ce dispositif a été utilisé sur des échantillons de LDF d'épaisseurs et de masses volumiques différentes ainsi que sur du MDF. Ces résultats ont servi dans une procédure inverse d'identification du coefficient de diffusion massique réduit. L'algorithme d'optimisation cherchait alors à réduire simultanément la différence entre les deux grandeurs expérimentales et leurs valeurs prédites. Lorsque la formulation classique de transfert couplés est utilisée, il existe un déphasage entre ces deux grandeurs que le coefficient de diffusion identifié ne peut prédire. Cela confirme bien l'existence du non équilibre local.

Par la suite, la nouvelle formulation alimentée par les fonctions mémoires déterminées précédemment à été utilisée dans la procédure d'identification. Dans ces conditions, le coefficient de diffusivité identifié permet une excellente prédiction pour les échantillons de LDF. Le fait que les fonctions mémoires fonctionnent pour diverses épaisseurs et masses volumiques démontre bien l'origine microscopique du phénomène. On constate par ailleurs que l'effet du non-équilibre diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de l'échantillon. Cela est cohérent puisque le temps caractéristique macroscopique est fonction du carré de l'épaisseur. La prédiction ne fonctionne par contre pas pour le MDF ce qui semble indiquer que l'origine du déphasage n'est pas que microscopique mais pourrait venir d'un état de contrainte non-homogène dans l'épaisseur de l'échantillon.

Grâce à une analyse rigoureuse du couplage chaleur masse, une nouvelle formulation prenant en compte le non équilibre local et le développement d'un nouveau dispositif expérimental, cette étude a donc bien permis d'améliorer de façon significative la prédiction des transferts hygrothermiques dans les matériaux isolants biosourcés.

Les perspectives de ce travail de thèse s'inscrivent également dans une volonté d'améliorer la prédiction des consommations énergétiques des bâtiments composés de matériaux biosourcés.

Un premier axe de travail pourrait être de déterminer les fonctions mémoires des matériaux sur des cycles de désorption. Nous pourrions alors vérifier si celles-ci sont identiques à celles déterminées lors d'un cycle de sorption. De manière plus générale, une étude expérimentale approfondie des mécanismes de relaxation moléculaire aurait également tout son intérêt.

Fort de ces données, le dispositif expérimental développé durant ce travail de thèse pourrait être utilisé lors de cycles de désorption afin de valider la qualité des prédictions. En utilisant un modèle prenant en compte l'hysteresis de sorption de manière performante, il serait ensuite possible de l'utiliser avec des sollicitations cycliques. Cela permettrait de se rapprocher des conditions réellement subies par le matériau.

Il sera alors envisageable d'implémenter la nouvelle formulation dans un code existant pouvant simuler le comportement hygrothermique d'un bâtiment entier. Des mesures in-situ permettraient alors de vérifier la qualité des prédictions.

Par ailleurs, ce travail a mis en lumière la variété des approches possibles pour déterminer les paramètres macroscopiques influant sur le comportement hygrothermique des matériaux biosourcés. Il pourrait être judicieux d'évaluer comment les professionnels du secteur pourraient s'appropriier ces nouvelles méthodes. Quelles sont leurs points faibles et leurs point forts comparé aux méthodes traditionnelles? Dans quel ordre les mettre en oeuvre?

Enfin, si les panneaux de fibres ont été au centre de ce travail de thèse, il apparait que la démarche développée au cours de ce travail doit pouvoir s'appliquer à tout type de matériaux biosourcés. Cela permettra à la fois de vérifier l'existence des phénomènes mis en lumière et de fournir les données expérimentales nécessaires à des simulations à l'échelle bâtiment.

Bibliographie

- [Adan, 1994] ADAN, O. (1994). *On the fungal defacement of interior finishes*. Thèse de doctorat, Eindhoven University of Technology.
- [ADEME, 2015] ADEME (2015). Chiffres clés : climat, air et énergie. Rapport technique, Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie.
- [Aditya *et al.*, 2017] ADITYA, L., MAHLIA, T. M., RISMANCHI, B., NG, H. M., HASAN, M. H., METSELAAR, H. S., MURAZA, O. et ADITIYA, H. B. (2017). A review on insulation materials for energy conservation in buildings. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 73(January):1352–1365.
- [Agoua *et al.*, 2001] AGOUA, E., ZOHOUN, S. et PERRÉ, P. (2001). A double climatic chamber used to measure the diffusion coefficient of water in wood in unsteady-state conditions : Determination of the best fitting method by numerical simulation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44(19):3731–3744.
- [Almeida et Hernández, 2006] ALMEIDA, G. et HERNÁNDEZ, R. (2006). Changes in physical properties of yellow birch below and above the fiber saturation point. *Wood and Fiber Science*, 38(1):74–83.
- [Almeida *et al.*, 2010] ALMEIDA, G., REMOND, R. et PERRÉ, P. (2010). Evidence of Dual-Scale Diffusion Mechanisms in Low Density Fibreboards : Experiment and Multiscale Modelling. In *International Drying Symposium*, Magdeburg.
- [Baliga et Patankar, 1983] BALIGA, B. R. et PATANKAR, S. V. (1983). A control volume finite-element method for two-dimensional fluid flow and heat transfer. *Numerical Heat Transfer*, 6(3):245–261.
- [Barenblatt *et al.*, 1960] BARENBLATT, G., ZHELTOV, I. et KOCHINA, I. (1960). Basic concepts in the theory of seepage of homogeneous liquids in fissured rocks [strata]. *Journal of Applied Mathematics and Mechanics*, 24(5):1286–1303.
- [Bingol *et al.*, 2012] BINGOL, G., PRAKASH, B. et PAN, Z. (2012). Dynamic vapor sorption isotherms of medium grain rice varieties. *LWT - Food Science and Technology*, 48(2):156–163.
- [Borloo et Apparu, 2010] BORLOO, J.-L. et APPARU, B. (2010). Dossier de presse : réglementation thermique "Grenelle Environnement 2012". Rapport technique.
- [Buchanan et Levine, 1999] BUCHANAN, A. H. et LEVINE, S. (1999). Wood-based building materials and atmospheric carbon emissions. *Environmental Science & Policy*, 2(6):427–437.

- [Busser *et al.*, 2018] BUSSER, T., BERGER, J., PIOT, A., PAILHA, M., BERGER, J., PIOT, A., PAILHA, M. et WOLOSZYN, M. W. (2018). Experimental validation of hygrothermal models for building materials and walls : an analysis of recent trends. <hal-01678857>.
- [Champiré *et al.*, 2016] CHAMPIRÉ, F., FABBRI, A., MOREL, J. C., WONG, H. et MCGREGOR, F. (2016). Impact of relative humidity on the mechanical behavior of compacted earth as a building material. *Construction and Building Materials*, 110:70–78.
- [Christensen, 1967] CHRISTENSEN, G. (1967). Sorption and Swelling within Wood Cell Walls. *Nature*, 213:782–784.
- [Christensen et Kelsey, 1959] CHRISTENSEN, G. N. et KELSEY, K. E. (1959). The rate of sorption of water vapor by wood. *Holz Roh Werkst*, 17(5):178–188.
- [Clarke, 2007] CLARKE, J. J. A. (2007). *Energy Simulation in Building Design*. Routledge.
- [Colinart et Glouannec, 2017] COLINART, T. et GLOUANNEC, P. (2017). Temperature dependence of sorption isotherm of hygroscopic building materials. Part 1 : Experimental evidence and modeling. *Energy and Buildings*, 139:360–370.
- [Colinart *et al.*, 2017] COLINART, T., GLOUANNEC, P., BENDOUMA, M. et CHAUVELON, P. (2017). Temperature dependence of sorption isotherm of hygroscopic building materials. Part 2 : Influence on hygrothermal behavior of hemp concrete. *Energy and Buildings*, 152:42–51.
- [Crank, 1953] CRANK, J. (1953). A theoretical investigation of the influence of molecular relaxation and internal stress on diffusion in polymers. *Journal of Polymer Science*, 11(2):151–168.
- [Crank, 1975] CRANK, J. (1975). *The mathematics of diffusion*. Oxford University Press.
- [Crawley *et al.*, 2008] CRAWLEY, D. B., HAND, J. W., KUMMERT, M. et GRIFFIT, B. T. (2008). Contrasting the capabilities of building energy performance simulation programs. *Building and Environment*, 43:264–273.
- [Damfeu *et al.*, 2016] DAMFEU, J. C., MEUKAM, P. et JANNOT, Y. (2016). Modeling and measuring of the thermal properties of insulating vegetable fibers by the asymmetrical hot plate method and the radial flux method : Kapok, coconut, groundnut shell fiber and rattan. *Thermochimica Acta*, 630:64–77.
- [Duforestel, 2015] DUFORESTEL, T. (2015). *Des transferts couplés de masse et de chaleur à la conception bioclimatique : recherches sur l'efficacité énergétique des bâtiments*. Mémoire "hdr".
- [EDF, 2013] EDF (2013). Il était une fois les réglementations thermiques...
- [Fleury et Chiche, 2006] FLEURY, E. et CHICHE, M. (2006). Le Bois dans la construction. Etude bibliographique. Rapport technique.

- [Florentin *et al.*, 2017] FLORENTIN, Y., PEARLMUTTER, D., GIVONI, B. et GAL, E. (2017). A life-cycle energy and carbon analysis of hemp-lime bio-composite building materials. *Energy and Buildings*, 156:293–305.
- [Frandsen *et al.*, 2007] FRANDBSEN, H. L., DAMKILDE, L. et SVENSSON, S. (2007). A revised multi-Fickian moisture transport model to describe non-Fickian effects in wood. *Holzforschung*, 61(5):563–572.
- [Glaser, 1958] GLASER, H. (1958). Vereinfachte Berechnung der Dampfdiffusion durch geschichtete Wände bei Ausscheidung von Wasser und Eis. *Kältetechnik*, 10(11):358–364.
- [Gray, 1975] GRAY, W. G. (1975). A derivation of the equations for multi-phase transport. *Chemical Engineering Science*, 30(2):229–233.
- [Grosser, 1977] GROSSER, D. (1977). Die Holzer Mitteleuropas. Berlin. : *Ein mikro-photographischer Lehratlas*. Springer-Verlag 208pp.. c, 70.
- [Guitard, 1987] GUITARD, D. (1987). *Mécanique du matériau bois et composites*. Cépaduès.
- [Håkansson, 1998] HÅKANSSON, H. (1998). *Retarded sorption in wood : Experimental study, analyses and modelling*. Thèse de doctorat, Lund University.
- [Hens, 2015] HENS, H. L. (2015). Combined heat, air, moisture modelling : A look back, how, of help ? *Building and Environment*, 91:138–151.
- [Hill *et al.*, 2012] HILL, C. A., KEATING, B. A., JALALUDIN, Z. et MAHRDT, E. (2012). A rheological description of the water vapour sorption kinetics behaviour of wood invoking a model using a canonical assembly of Kelvin-Voigt elements and a possible link with sorption hysteresis. *Holzforschung*, 66(1):35–47.
- [Houngan, 2008] HOUNGAN, C. (2008). *Caractérisation hygrothermique des matériaux locaux de construction au benin : Diffusivité massique et isotherme de sorption, conductivité et diffusivité thermique*. Thèse de doctorat, ENGREF.
- [Hubert et Palencia, 1992] HUBERT, J. S. et PALENCIA, E. S. (1992). *Introduction aux méthodes asymptotiques et à l'homogénéisation : application à la mécanique des milieux continus*. Masson.
- [Karagiozis *et al.*, 2001] KARAGIOZIS, A., KÜNZEL, H. et HOLM, A. (2001). WUFI-ORNL/IBP a North American hygrothermal model. *Performance of Exterior Envelopes of Whole Buildings VIII*, pages 2–7.
- [Karoglou *et al.*, 2007] KAROGLU, M., MOROPOULOU, A., KROKIDA, M. K. et MAROULIS, Z. B. (2007). A powerful simulator for moisture transfer in buildings. *Building and Environment*, 42(2):902–912.
- [Keller, 1994] KELLER, R. (1994). La Constitution du Bois. In P, J., éditeur : *Le Bois Matériau d'Ingénierie*, chapitre 1, pages 13–51. ARBOLOR.
- [Kelly et Hart, 1970] KELLY, M. et HART, C. (1970). Water Vapor Sorption Rates By Wood Cell Walls.

- [Kolditz, 1995] KOLDITZ, O. (1995). Modelling flow and heat transfer in fractured rocks : dimensional effect of matrix heat diffusion. *Geothermics*, 24(3):421–437.
- [Krabbenhoft et Damkilde, 2004a] KRABBENHOFT, K. et DAMKILDE, L. (2004a). A model for non-Fickian moisture transfer in wood. *Materials and Structures*, 37(273): 615–622.
- [Krabbenhoft et Damkilde, 2004b] KRABBENHOFT, K. et DAMKILDE, L. (2004b). Double porosity models for the description of water infiltration in wood. *Wood Science and Technology*, 38:641–659.
- [Kronvall, 1980] KRONVALL, J. (1980). Air flows in building components. Rapport technique, Lund Institute of Technology.
- [Künzel *et al.*, 2005] KÜNZEL, H., HOLM, A., ZIRKELBACH, D. et KARAGIOZIS, A. (2005). Simulation of indoor temperature and humidity conditions including hygrothermal interactions with the building envelope. *Solar Energy*, 78(4):554–561.
- [Künzel, 1995] KÜNZEL, H. M. (1995). Simultaneous Heat and Moisture Transport in Building Components One- and two-dimensional calculation using simple parameters . Rapport technique.
- [Kwiatkowski *et al.*, 2009] KWIATKOWSKI, J., WOLOSZYN, M. et ROUX, J.-J. (2009). Modelling of hysteresis influence on mass transfer in building materials. *Building and Environment*, 44:633–642.
- [Lamrani *et al.*, 2017] LAMRANI, M., LAAROUSSI, N., KHABBAZI, A., KHALFAOUI, M., GAROUM, M. et FEIZ, A. (2017). Experimental study of thermal properties of a new ecological building material based on peanut shells and plaster. *Case Studies in Construction Materials*, 7:294–304.
- [Lelievre *et al.*, 2014] LELIEVRE, D., COLINART, T. et GLOUANNEC, P. (2014). Hygrothermal behavior of bio-based building materials including hysteresis effects : Experimental and numerical analyses. *Energy and Buildings*, 84:617–627.
- [Lescanne, 1992] LESCANNE, Y. (1992). *Caractérisation du papier en vue de la simulation du séchage par infrarouge électrique*. Thèse de doctorat, Vandoeuvre-les-Nancy, INPL.
- [Lever, 1985] LEVER, D. (1985). Rock-Matrix Diffusion and its Implications for Radionuclide Migration. *Mineralogical Magazine*, 49(351):245–254.
- [Luikov, 1975] LUIKOV, A. V. (1975). Systems of differential equations of heat and mass transfer in capillary-porous bodies (review). *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 18(1):1–14.
- [Maloszewski et Zuber, 1993] MALOSZEWSKI, P. et ZUBER, A. (1993). Tracer experiments in fractured rocks : Matrix diffusion and the validity of models. *Water Resources Research*, 29(8):2723–2735.
- [Mauget et Perré, 1999] MAUGET, B. et PERRÉ, P. (1999). A large displacement formulation for anisotropic constitutive laws. *European Journal of Mechanics - A/Solids*, 18:859–877.

- [MEDDE, 2011] MEDDE (2011). Réglementation thermique 2012 : un saut énergétique pour les bâtiments neufs. Rapport technique, Ministère de l'écologie et du développement durable.
- [MEEM, 2016] MEEM (2016). La transition énergétique pour la croissance verte : Bâtiments. Rapport technique, Ministère de l'Environnement, de l'Énergie et de la Mer.
- [Moench, 1984] MOENCH, A. (1984). Double-Porosity Models for a Fissured Groundwater Reservoir With Fracture Skin. *Water Resources Research*, 20(7):831.
- [MTES, 2017] MTES (2017). Référentiel Énergie Carbone pour les bâtiments neufs : Méthode d'évaluation de la performance énergétique et environnementale des bâtiments neufs. Rapport technique, Ministère de la Transition Écologique et Solidaire.
- [Olek *et al.*, 2011] OLEK, W., PERRÉ, P. et WERES, J. (2011). Implementation of a relaxation equilibrium term in the convective boundary condition for a better representation of the transient bound water diffusion in wood. *Wood Science and Technology*, 45:677–691.
- [Orosa et Baaliña, 2009] OROSA, J. A. et BAALIÑA, A. (2009). Improving PAQ and comfort conditions in Spanish office buildings with passive climate control. *Building and Environment*, 44(3):502–508.
- [Osanyintola et Simonson, 2006] OSANYINTOLA, O. F. et SIMONSON, C. J. (2006). Moisture buffering capacity of hygroscopic building materials : Experimental facilities and energy impact. *Energy and Buildings*, 38(10):1270–1282.
- [Parker *et al.*, 1961] PARKER, W. J., JENKINS, R. J., BUTLER, C. P. et ABBOTT, G. L. (1961). Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity. *Journal of Applied Physics*, 32(9):1679–1684.
- [Pawelzik *et al.*, 2013] PAWELZIK, P., CARUS, M., HOTCHKISS, J., NARAYAN, R., SELKE, S., WELLISCH, M., WEISS, M., WICKE, B. et PATEL, M. K. (2013). Critical aspects in the life cycle assessment (LCA) of bio-based materials - Reviewing methodologies and deriving recommendations. *Resources, Conservation and Recycling*, 73:211–228.
- [Pel *et al.*, 1996] PEL, L., BROCKEN, H. et KOPINGA, K. (1996). Determination of moisture diffusivity in porous media using moisture concentration profiles. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 39(6):1273–1280.
- [Peñaloza *et al.*, 2016] PEÑALOZA, D., ERLANDSSON, M. et FALK, A. (2016). Exploring the climate impact effects of increased use of bio-based materials in buildings. *Construction and Building Materials*, 125:219–226.
- [Perez-Garcia *et al.*, 2005] PEREZ-GARCIA, J., LIPPKE, B., BRIGGS, D., WILSON, J. B., BOWYER, J. et MEIL, J. (2005). The environmental performance of renewable building materials in the context of residential construction. *Wood and Fiber Science*, 37:3–17.

- [Perré, 2015] PERRÉ, P. (2015). The Proper Use of Mass Diffusion Equations in Drying Modeling : Introducing the Drying Intensity Number. *Drying Technology*, 33(15-16):1949–1962.
- [Perré, 2018] PERRÉ, P. (2018). Coupled heat and mass transfer in lignocellulosic materials : a macroscopic formulation with non-Fickian effects suitable for Building Energy Simulation Tools. *Submitted*.
- [Perre et Degiovanni, 1990] PERRE, P. et DEGIOVANNI, A. (1990). Simulation par volumes finis des transferts couplés en milieux poreux anisotropes : séchage du bois à basse et à haute température. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 33(11):2463–2478.
- [Perré et al., 2015] PERRÉ, P., PIERRE, F., CASALINHO, J. et AYOUB, M. (2015). Determination of the Mass Diffusion Coefficient Based on the Relative Humidity Measured at the Back Face of the Sample during Unsteady Regimes. *Drying Technology*, 33 :9:1068–1075.
- [Perré et Rémond, 2006] PERRÉ, P. et RÉMOND, R. (2006). A Dual-Scale Computational Model of Kiln Wood Drying Including Single Board and Stack Level Simulation. *Drying Technology*, 24:1069–1074.
- [Perre et al., 2007] PERRE, P., RÉMOND, R. et TURNER, I. W. (2007). Comprehensive drying models based on volume averaging : background, application and perspective. *Modern drying technology*, 1:1–55.
- [Perré et Turner, 1999] PERRÉ, P. et TURNER, I. W. (1999). A 3-D version of Trans-Pore : a comprehensive heat and mass transfer computational model for simulating the drying of porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 42(24):4501–4521.
- [Peszynska, 1992] PESZYNSKA, M. (1992). *Fluid Flow Through Fissured Media. Mathematical Analysis and Numerical Approach*. Thèse de doctorat, University of Augsburg.
- [Philip et Vries, 1957] PHILIP, J. R. et VRIES, D. A. D. (1957). Moisture movement in porous materials under temperature gradient. *American Geophysical Union*, 38(2): 229–237.
- [Pierre et al., 2014] PIERRE, T., COLINART, T. et GLOUANNEC, P. (2014). Measurement of thermal properties of biosourced building materials. *International Journal of Thermophysics*, 35(9-10):1832–1852.
- [Pleinert et al., 1998] PLEINERT, H., SADOUKI, H. et WITTMANN, F. H. (1998). Determination of moisture distributions in porous building materials by neutron transmission analysis. *Materials and Structures*, 31(4):218–224.
- [Programme HABISOL, 2015] PROGRAMME HABISOL (2015). Guide de bonnes pratiques pour l'évaluation des performances thermohygriques des bâtiments. Rapport technique.

- [Rémond et Almeida, 2011] RÉMOND, R. et ALMEIDA, G. (2011). Mass diffusivity of low-density fibreboard determined under steady- and unsteady-state conditions : Evidence of dual-scale mechanisms in the diffusion. *Wood Material Science and Engineering*, 6 :1-2:23–33.
- [Rémond *et al.*, 2018] RÉMOND, R., ALMEIDA, G. et PERRÉ, P. (2018). The gripped-box model : A simple and robust formulation of sorption hysteresis for lignocellulosic materials. *Construction and Building Materials*, 170:716–724.
- [Rode, 1990] RODE, C. (1990). Combined Heat and Moisture Transfer in Building Constructions. page 132.
- [Rousset *et al.*, 2004] ROUSSET, P., PERRÉ, P. et GIRARD, P. (2004). Modification of mass transfer properties in poplar wood (*P. robusta*) by a thermal treatment at high temperature. *Holz Roh Werkst*, 62(2):113–119.
- [Rudy *et al.*, 2017] RUDY, B., MATTHIEU, L. et JEAN-EMMANUEL, A. (2017). Comparison of the Saturated Salt Solution and the Dynamic Vapor Sorption techniques based on the measured sorption isotherm of barley straw. *Construction and Building Materials*, 141:140–151.
- [Sánchez-Palencia, 1980] SÁNCHEZ-PALENCIA, E. (1980). Non-homogeneous media and vibration theory. *Lecture notes in physics*, 127.
- [Showalter, 1997] SHOWALTER, R. (1997). Microstructure models of porous media. *Homogenization and Porous Media*, 1(1):184–202.
- [Showalter et Hornung, 1990] SHOWALTER, R. et HORNUNG, U. (1990). Diffusion Models for Fractured Media. *Journal of mathematical analysis and applications*, 147:69–80.
- [Showalter, 1991] SHOWALTER, R. E. (1991). Diffusion models with microstructure. *Transport in Porous Media*, 6(5-6):567–580.
- [Siau, 1984] SIAU, J. (1984). *Transport Processes in Wood*. Springer-Verlag.
- [Simo JC ; Hughes TJR, 1998] SIMO JC ; HUGHES TJR (1998). *Computational Inelasticity*. Springer-Verlag.
- [Souihel *et al.*, 2017] SOUIHEL, M., GAROUM, M., RAEFAT, S. et LAAROUSSI, N. (2017). Simultaneous estimation of volumetric capacity and thermal conductivity of moroccan wood species from experimental Flash method. *Energy Procedia*, 139:639–644.
- [Spitz *et al.*, 2012] SPITZ, C., MORA, L., WURTZ, E. et JAY, A. (2012). Practical application of uncertainty analysis and sensitivity analysis on an experimental house. *Energy and Buildings*, 55:459–470.
- [Tarmian *et al.*, 2012] TARMIAN, A., REMOND, R., DASHTI, H. et PERRÉ, P. (2012). Moisture diffusion coefficient of reaction woods : Compression wood of *Picea abies* L. and tension wood of *Fagus sylvatica* L. *Wood Science and Technology*, 46(1-3):405–417.

- [Teesdale, 1937] TEESDALE, L. (1937). Condensation in walls and attics. Rapport technique.
- [Vololonirina *et al.*, 2014] VOLOLONIRINA, O., COUTAND, M. et PERRIN, B. (2014). Characterization of hygrothermal properties of wood-based products - Impact of moisture content and temperature. *Construction and Building Materials*, 63:223–233.
- [Vos, 1969] VOS, B. H. (1969). Internal condensation in structures. *Building Science*, 3(4):191–206.
- [Wadsö, 1993] WADSÖ, L. (1993). *Studies of Water Vapor Transport and Sorption in Wood*. Thèse de doctorat, Lund University.
- [Wang et Ge, 2016] WANG, L. et GE, H. (2016). Hygrothermal performance of cross-laminated timber wall assemblies : A stochastic approach. *Building and Environment*, 97:11–25.
- [Warren et Root, 1963] WARREN, J. et ROOT, P. (1963). The Behavior of Naturally Fractured Reservoir. *Society of Petroleum Engineers Journal*.
- [Whitaker, 1967] WHITAKER, S. (1967). Diffusion and Dispersion in Porous Media. *AIChE Journal*, 13(3):420–427.
- [Whitaker, 1977] WHITAKER, S. (1977). Simultaneous Heat, Mass, and Momentum Transfer in Porous Media : A Theory of Drying. *advances in Heat Transfer*, 13:119–203.
- [Whitaker, 1986] WHITAKER, S. (1986). Flow in porous media I : A theoretical deviation of Darcy's law. *Transport in Porous Media*, 1:3–25.
- [Wolf *et al.*, 2012] WOLF, M.-A., PANT, R., CHOMKHAMRSRI, K., SALA, S. et PENNINGTON, D. (2012). The International Reference Life Cycle Data System (ILCD) Handbook. Rapport technique, Joint Research Center.
- [Wolkoff et Kjærgaard, 2007] WOLKOFF, P. et KJÆRGAARD, S. K. (2007). The dichotomy of relative humidity on indoor air quality. *Environment International*, 33(6):850–857.
- [Woloszyn *et al.*, 2009] WOLOSZYN, M., KALAMEES, T., ABADIE, M. O., STEEMAN, M. et SASIC KALAGASIDIS, A. (2009). The effect of combining a relative-humidity-sensitive ventilation system with the moisture-buffering capacity of materials on indoor climate and energy efficiency of buildings. *Building and Environment*, 44(3):515–524.
- [Zabalza Bribián *et al.*, 2011] ZABALZA BRIBIÁN, I., VALERO CAPILLA, A. et ARANDA USÓN, A. (2011). Life cycle assessment of building materials : Comparative analysis of energy and environmental impacts and evaluation of the eco-efficiency improvement potential. *Building and Environment*, 46(5):1133–1140.
- [Zohoun *et al.*, 2003] ZOHOUN, S., AGOUA, E., DEGAN, G. et PERRÉ, P. (2003). An experimental correction proposed for an accurate determination of mass diffusivity of wood in steady regime. *Heat and Mass Transfer*, 39(2):147–155.

Table des figures

1.1	Différentes directions d'étude du bois. Extrait de [Guitard, 1987]	17
1.2	Structure d'un tronc d'arbre. Extrait de [Grosser, 1977]	17
1.3	Arrangement cellulaire d'un bloc de conifère. Extrait de [Grosser, 1977]	18
1.4	Exemple d'isothermes de sorption. Extrait de [Siau, 1984]	20
1.5	gauche :a)Etude du risque de condensation dans un mur selon Teesdale, droite :b)Etude du risque de condensation dans un mur selon Glaser (Image tirées de [Hens, 2015])	22
1.6	gauche : a)Schéma représentatif d'un VER dans le cas du bois, droite : b)Schéma explicatif quant à la taille du VER, l'exemple correspond à la masse volumique avec 1 dans la phase solide et 2 dans un pore. Extraits de [Perré, 2015]	26
1.7	Évolution de la masse adimensionnée en fonction de la racine carré du temps divisée par l'épaisseur pour des échantillon de LDF de différentes épaisseurs lorsque soumis à une perturbation de l'humidité relative am- biant, extrait de [Rémond et Almeida, 2011]	34
2.1	Schéma de principe de la prédiction du comportement macroscopique .	45
2.2	Simulations de l'évolution de la température (haut) et de l'humidité relative (bas) en face arrière de l'échantillon pour diverses configurations	47
2.3	Comparaison entre résultats expérimentaux et simulations pour l'humid- ité relative (haut) et la teneur en eau (bas) sur l'échantillon de LDF de 20 mm d'épaisseur et de masse volumique 145 kg.m^{-3}	50
2.4	Comparaison entre résultats expérimentaux et simulation avec ou sans fonctions mémoire pour le LDF sur le saut d'humidité de 40 à 60 % . .	52
2.5	Comparaison entre résultats expérimentaux et simulations avec ou sans fonction mémoire pour l'humidité relative (haut) et la teneur en eau (bas) sur l'échantillon de LDF de 20 mm et de masse volumique 145 kg.m^{-3}	54
2.6	Schéma récapitulatif de l'organisation du travail de thèse	56
A.1	Évolution de la fonction mémoire en fonction d'un temps adimensionné pour une géométrie cylindrique	165
A.2	Fonction mémoire analytique approximée par deux termes exponentiels	165

B.1	De gauche a droite : a) Vue du modèle CAO avec 1) vérin, 2) plateau tournant, 3) couronne, 4) plateau de pesée, b) Photo du dispositif dans l'enceinte climatique	168
B.2	De gauche a droite : a) Vue du model CAO lorsque le dispositif est en position de lecture de l'humidité face arrière, b) Vue du model CAO lorsque le dispositif est en position de pesée, les surfaces où se produisent le contact ont été représentées en rouge	169
B.3	de gauche à droite : a) Vue de l'enceinte avec la plaque montée (partie opérationnelle, b) Vue de l'enceinte avec la plaque démontée (partie régulation)	170
B.4	Évolution de l'humidité relative et de la température dans l'enceinte pour un saut d'humidité de 40 à 60 %.	171
B.5	Photo du support de la tige posé sur la balance	171
B.6	Porte-échantillons (de gauche à droite) :a) modèle CAO vue isométrique haute, b) modèle CAO vue isométrique basse, c) modèle CAO vue éclaté avec 1) cible, 2) cone, 3) tige, 4) partie haute, 5) support avec tube caoutchouc inséré, 6)entretoises, 7) disque PVC, 8) échantillon, d) photo	172
B.7	de gauche à droite : a) Structure permettant de définir les positions basses et intermédiaire, b) Contacteur définissant la position haute . . .	174
B.8	Schéma explicatif du fonctionnement du robot	175
B.9	Comparaison des résultats de deux essais de pesé d'un porte échantillon : ventilation allumée ou éteinte.	176
B.10	Photo du boitier de contrôle fermé (gauche) et ouvert (droite)	177

Annexe A

Complément sur la formulation macroscopique avec effet mémoire

Cet annexe vise à donner des précisions sur la formulation macroscopique avec effet mémoire permettant de modéliser les phénomènes de non-équilibre local, déjà abordée au chapitre 5 et 6. Une description plus approfondie est également consultable en [Perré, 2018]

A.1 Modélisation du non-équilibre avec des fonctions mémoires

Le phénomène de non-équilibre local est modélisé par une fonction mémoire $\varphi(t)$. Cette fonction traduit la réaction de la phase de stockage (les fibres végétales dans ce travail de thèse) lorsqu'elles sont soumises à l'instant t_0 à une perturbation de l'humidité relative ambiante de HR_{ini} à HR_{fin} . Soit $X(t)$ la teneur en eau de la phase de stockage, pour $t < t_0$ on a :

$$X(t) = X_{ini} = X_{eq}(HR_{ini}) \quad (\text{A.1})$$

où X_{eq} est la valeur d'équilibre de la teneur en eau qui est définie par l'isotherme de sorption.

A $t = t_0$, les frontières de la phase de stockage sont à l'équilibre avec RH_{fin} et un phénomène de diffusion vers l'intérieur des fibres se produit. La teneur en eau s'exprime alors comme suit :

$$X(t) - X_{ini} = \Delta X_{eq} \cdot \varphi(t) \quad (\text{A.2})$$

avec $\Delta X_{eq} = X_{eq}(RH_{fin}) - X_{eq}(HR_{ini})$ et φ une fonction monotone tel que : $\lim_{t \rightarrow \infty} \varphi(t) = 1$.

Cependant, comme en générale la valeur de l'humidité relative ne suit pas une fonction créneau mais varie avec le temps, un produit de convolution apparaît :

$$X(t) - X_{ini} = \int_0^t \varphi(t - \tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau \quad (\text{A.3})$$

Soit l'équation de conservation de la masse d'eau où le terme de transport est exprimé en fonction du gradient de vapeur :

$$\frac{\partial X(x,t)}{\partial t} + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x,t)) = 0 \quad (\text{A.4})$$

En combinant les équations A.3 et A.4 on peut obtenir une equation de conservation de la masse d'eau ne dépendant que de la valeur d'équilibre de la teneur en eau X_{eq} et de la fonction mémoire φ :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\int_0^t \varphi(t - \tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau \right) + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x,t)) = 0 \quad (\text{A.5})$$

Une intégration par partie permet de retrouver une equation de la forme de celle trouvée dans [Showalter, 1991] et qui était présentée en 1.3.4 :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(a \cdot X_{eq} + \int_0^t k(t - \tau) \frac{\partial X_{eq}}{\partial \tau} d\tau \right) + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x,t)) = 0 \quad (\text{A.6})$$

avec $k = \frac{\partial \varphi}{\partial t}$ et $a = \varphi(0)$ qui représente la réponse instantanée de la phase de stockage après variation de l'humidité. En d'autres termes, il s'agit de la partie de la phase de stockage dont la réaction est suffisamment rapide pour ne pas être modélisée avec un temps de relaxation.

Concernant la fonction memoire $\varphi(t)$, si le phénomène de transfert à l'intérieur de la phase de stockage obéit à une loi de diffusion classique, une solution analytique existe. Il s'agit de la solution au problème de diffusion à l'intérieur de la phase de stockage [Peszynska, 1992].

Par exemple, pour un cylindre infini de rayon a :

$$\varphi = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{a^2 \beta_n^2} \exp(-D_{micro} \beta_n^2 t) \quad (\text{A.7})$$

avec D_{micro} le coefficient de diffusion de la phase de stockage (les fibres), t le temps et β_n la $n^{\text{ème}}$ racine positive de la fonction de Bessel d'ordre zero.

L'évolution de cette fonction est représentée en fonction du temps adimensionné en figure A.1 .

A.2 Implémentation numérique

On approxime la fonction mémoire sous la forme $\varphi = 1 - \sum_{i=1}^N \alpha_i \exp(\frac{-t}{\tau_i})$ avec N un entier. Dans ce travail de thèse, la fonction mémoire φ est approximé par la somme de une ou deux fonctions exponentielles. Cette approximation permet d'approcher la solution analytique et ce même aux temps courts. Ainsi en figure A.2 on peut

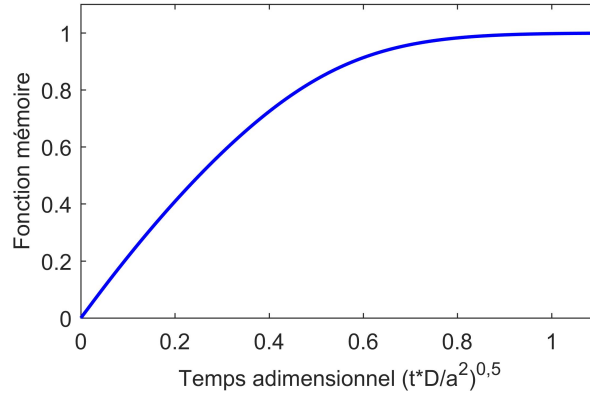


FIGURE A.1 – Évolution de la fonction mémoire en fonction d'un temps adimensionné pour une géométrie cylindrique

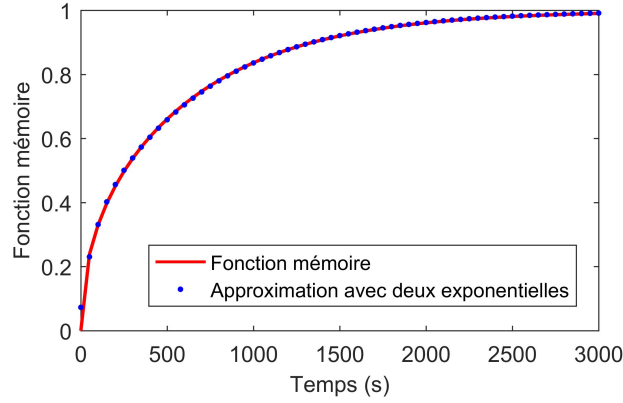


FIGURE A.2 – Fonction mémoire analytique approximée par deux termes exponentiels

voir l'approximation de la solution analytique pour une géométrie cylindrique. Les paramètres d'entrée sont $D = 10^{-13} m^2.s^{-1}$ et $a = 20 \mu m$

Par ailleurs, la forme particulière de la fonction φ permet son implémentation. En effet, l'équation A.3 se simplifie sous la forme :

$$X(t) = X_{eq} - \int_0^t \sum_{i=1}^N \alpha_i \exp\left(-\frac{t-\tau}{\tau_i}\right) dX_{eq} = X_{eq} - \sum_{i=1}^N \phi_i(t) \quad (\text{A.8})$$

$\phi_i(t)$ est alors une variable interne qui est mise à jour en tout point du domaine à chaque variation temporelle [Simo JC; Hughes TJR, 1998, Mauget et Perré, 1999] grâce à la relation de récurrence suivante :

$$\phi_i(x, t + dt) = \exp\left(-\frac{dt}{\tau_i}\right) \phi_i(x, t) + \alpha_i dX_{eq}(x) \quad (\text{A.9})$$

On peut alors exprimer l'équation de conservation de la masse en fonction de X_{eq} et ϕ :

$$\frac{\partial}{\partial t}(X_{eq}(x,t) - \sum_{i=1}^N \phi_i(x,t)) + \nabla \cdot (D_{eff} \nabla X_{eq}(x,t)) = 0 \quad (\text{A.10})$$

On peut cependant toujours travailler avec la grandeur X car en dérivant l'équation A.8 on obtient la relation suivante :

$$dX_{eq}(1 - \sum_{i=1}^N \alpha_i) = dX + \sum_{i=1}^N \phi_i(t) \left(\exp\left(-\frac{dt}{\tau_i}\right) - 1 \right) \quad (\text{A.11})$$

A noter que cette relation n'est utilisable que si $\varphi(0) > 0$, en effet dans le cas inverse il n'est plus possible d'exprimer X_{eq} en fonction de X .

Annexe B

Complément sur le dispositif expérimental

Tout au long de ce travail, un nouveau dispositif expérimental original a été réalisé. Celui-ci a servi à obtenir les résultats exposés au chapitre 6 où une description succincte en est donnée. Cet annexe apporte des précisions supplémentaires sur son fonctionnement et son développement.

B.1 Principe général

Le principe du dispositif est, après stabilisation des conditions en humidité et température, de soumettre un échantillon à une perturbation de l'humidité relative sur sa face avant ce qui va créer un flux diffusif dans son épaisseur. On mesure alors simultanément l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière ainsi que de sa masse. Ces tests pouvant être très longs (jusqu'à plusieurs semaines), le dispositif a été conçu pour traiter jusqu'à huit échantillons différents lors d'un même essai. Il est construit autour d'un robot peseur d'échantillons placé dans une enceinte climatique contrôlée en humidité relative et en température. Afin d'éviter la présence de fils qui perturberaient la pesée, plusieurs solutions ont été envisagées pour la lecture de l'humidité relative en face arrière tels que des capteurs WIFI. Cependant, il est apparu que la solution la plus probante était d'utiliser un contact temporaire. La présence d'un support en forme de couronne associé à un plateau tournant permet de passer d'un échantillon à l'autre. Une représentation CAO 3D du dispositif est visible en figure B.1 a) et une photo de celui-ci dans l'enceinte climatique en figure B.1 b).

Les échantillons de forme cylindrique (diamètre 72mm) sont placés dans des porte-échantillons (figure B.6). A l'arrière de l'échantillon est placé un disque en PVC accueillant un capteur d'humidité. Ce capteur est lié à une cible située en haut du porte-échantillon. Lors d'un mouvement ascendant, le robot va amener la cible contre des contacteurs qui transmettront l'information jusqu'au poste de contrôle (voir figure B.2 a)). Concernant la lecture de masse, le robot va venir déposer le porte échantillon

sur un plateau (voir figure B.2 b)) reposant sur une balance située sous l'enceinte. En remontant, le porte-échantillon va se recentrer dans la couronne grâce au contact de deux portées coniques. Une fois les grandeurs enregistrées, le plateau tournant va assurer un mouvement de rotation horizontal permettant de placer l'échantillon suivant en position de mesure.

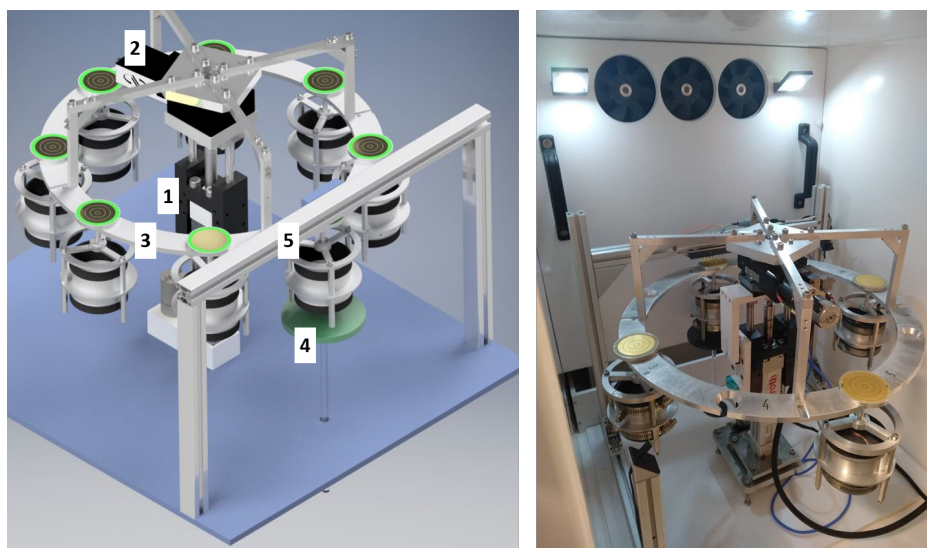


FIGURE B.1 – De gauche a droite : a) Vue du modèle CAO avec 1) vérin, 2) plateau tournant, 3) couronne, 4) plateau de pesée, b) Photo du dispositif dans l'enceinte climatique

B.2 Fonctionnement des différents éléments

Ce dispositif est constitué de différents ensembles comportant eux même de nombreux éléments. Cette partie détaille le fonctionnement de ces différents ensembles.

B.2.1 Enceinte climatique

Afin d'avoir un contrôle des dimensions et des passages de parois de l'enceinte climatique, celle-ci a été réalisée au laboratoire à partir d'une chambre isolée thermiquement (Froid Loisir Equipement, Saillans, France). Cette chambre a été divisée en une partie opérationnelle qui contient le robot peseur d'échantillon, située à l'avant, et une partie servant à la régulation, située à l'arrière. Ces deux parties sont séparées par une plaque verticale. Sur la figure B.3 a), on peut observer l'intérieur de l'enceinte avec la plaque montée, ce qui correspond à la partie opérationnelle et sur la figure B.3 b) avec la plaque démontée, ce qui correspond à la partie servant à la régulation. La régulation est réalisée grâce à un flux d'air mis en contact avec un écoulement

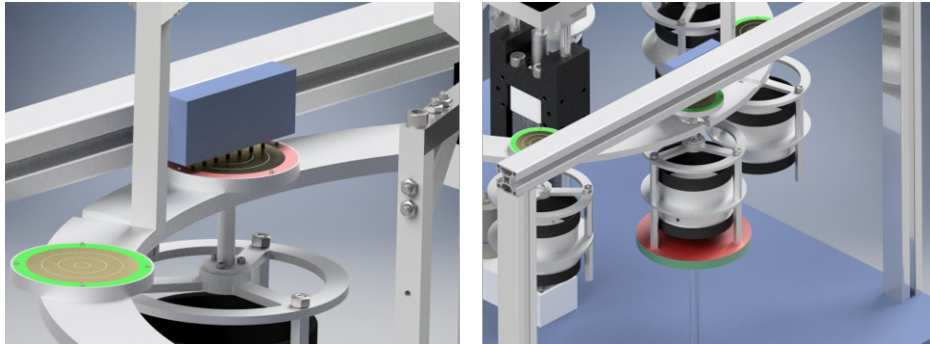


FIGURE B.2 – De gauche a droite : a) Vue du model CAO lorsque le dispositif est en position de lecture de l’humidité face arrière, b) Vue du model CAO lorsque le dispositif est en position de pesée, les surfaces où se produisent le contact ont été représentées en rouge

d’eau dont la température est contrôlée. L’eau va ainsi imposer le point de rosé de l’air ce qui permet d’obtenir l’humidité relative souhaitée. Le contrôle en température de l’air se fait grâce à huit résistances fixées sur la face arrière de la plaque verticale pour une puissance totale de 560 W. Un système de contrôle PID (3206 Controller , Eurotherme Automation, Dardilly, France) associé à une sonde Pt100 située dans la partie opérationnelle permet d’atteindre la température souhaitée. La température de l’eau est contrôlée par un thermocryostat (Ministat230, HUBER, Offenburg, Germany). Celui-ci pompe l’eau jusque en haut de la face arrière de l’enceinte, elle va alors s’écouler sur un plan incliné où elle entre en contact avec le flux d’air généré par trois ventilateurs. L’eau est ensuite récupérée dans un bac et s’écoule par gravité jusqu’au thermocryostat. On notera la présence d’un système de réglage permettant d’ajuster l’alignement du plan d’écoulement avec le bac. Concernant les différents passages à travers les parois, des pièces en deux parties permettent d’assurer l’étanchéité et ainsi prévenir les transferts de vapeur vers l’isolant de l’enceinte. Par ailleurs, la contenance du thermocryostat n’est pas suffisante pour alimenter le dispositif. Un système de remplissage a donc été mis au point pour permettre le développement de protocoles de démarrage et de vidange.

Deux capteurs d’humidité relative/température (Sensirion SHT75, HDI Electronics, Pérois, France) enregistrent les conditions à l’intérieur de l’enceinte. Sur la figure B.4, on peut observer l’évolution de la moyenne de ces deux grandeurs lors d’un saut d’humidité de 40 à 60 % en conditions isothermes à 35 °C. Le thermocryostat met environ 10 minutes à atteindre la température ciblée. A ce moment là, le changement d’humidité relative a déjà atteint 90 % du changement de valeur. La valeur finale est obtenue après une heure, lorsque la température est revenue à sa valeur d’équilibre. L’enceinte offre donc des performances dynamiques suffisantes comparées aux phénomènes étudiés et permet d’obtenir des conditions très stables en statique.

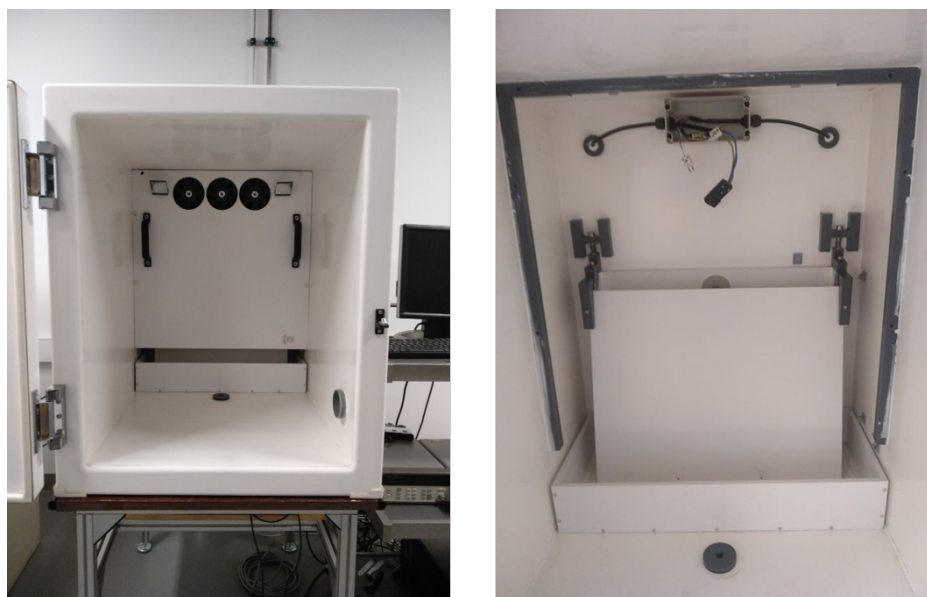


FIGURE B.3 – de gauche à droite : a) Vue de l'enceinte avec la plaque montée (partie opérationnelle, b) Vue de l'enceinte avec la plaque démontée (partie régulation)

B.2.2 Système de pesé

Lors de la pesée, le porte échantillon repose sur un plateau circulaire en PVC fixé à l'extrémité supérieure d'une tige en verre. Cette tige en verre traverse la paroi de l'enceinte climatique et est fixée à un support à son extrémité inférieure (figure B.5). Ce support repose lui même sur une balance électronique (EP6102C, Ohaus, Greifensee, Switzerland) de précision 0,01g. Il dispose de trois pieds réglables pour assurer une colinéarité suffisante entre la tige et l'orifice dans la paroi de l'enceinte.

La tige traverse la pièce assurant l'étanchéité qui est percée en son centre. L'écart de diamètre entre l'orifice et la tige est suffisamment faible pour limiter les échanges de vapeur vers l'extérieur tout en laissant assez de marge pour éviter le contact. Par ailleurs, le choix du verre pour la tige est dû à sa faible conductivité thermique, afin d'éviter des phénomènes de condensation à l'interface entre l'enceinte et l'extérieur.

B.2.3 Porte-échantillon

Les portes-échantillon sont au centre du dispositif et ont été conçus pour assurer la qualité de la pesée ainsi que celle de la lecture de l'humidité en face arrière. Des vues du modèle CAO 3D de haut et de bas sont visibles en figure B.6 a) et b) et une photo en figure B.6 d). Ils sont composés de divers éléments récapitulés sur la vue éclatée du modèle CAO 3D en figure B.6 c).

Sur l'une des faces du disque PVC est disposé un capteur d'humidité relative qui va lire l'évolution de ces grandeurs sur la face arrière de l'échantillon. Ce disque est pressé

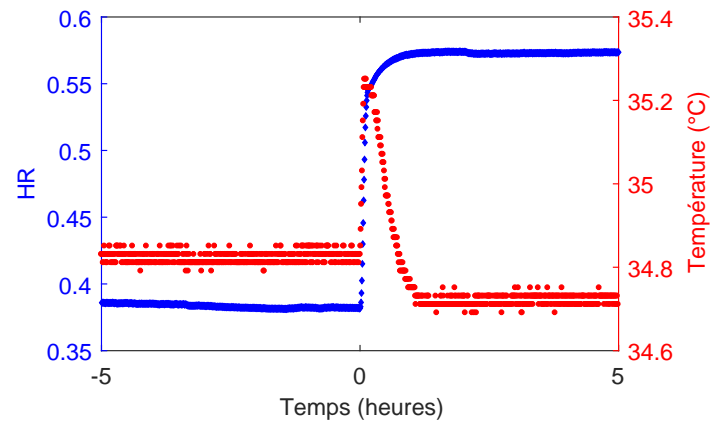


FIGURE B.4 – Évolution de l'humidité relative et de la température dans l'enceinte pour un saut d'humidité de 40 à 60 %.



FIGURE B.5 – Photo du support de la tige posé sur la balance

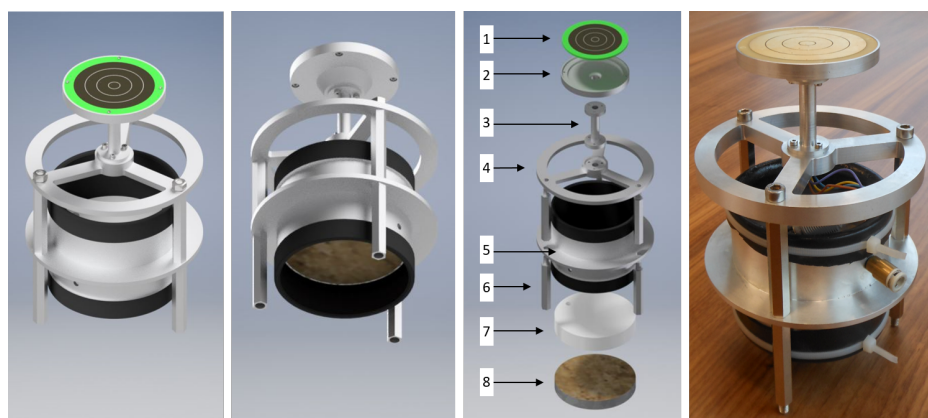


FIGURE B.6 – Porte-échantillon (de gauche à droite) :a) modèle CAO vue isométrique haute, b) modèle CAO vue isométrique basse, c) modèle CAO vue éclaté avec 1) cible, 2) cône, 3) tige, 4) partie haute, 5) support avec tube caoutchouc inséré, 6) entretoises, 7) disque PVC, 8) échantillon, d) photo

contre l'échantillon, une légère extrusion assurant l'existence d'un volume mort pour la lecture de l'humidité. L'ensemble est ensuite inséré dans le support. A l'intérieur de ce support est fixé un tube en caoutchouc à l'aide de colliers serrant. Ce tube a un diamètre intérieur légèrement inférieur à celui des échantillons. Une ouverture sur la face latérale du support permet d'y brancher une pompe à vide. Ainsi, le tube en caoutchouc va se dilater contre la face intérieur du support ce qui permet d'insérer l'ensemble disque/échantillon. Lorsque la pompe est débranchée, le tube en caoutchouc va venir presser les parois de cet ensemble et ainsi assurer l'étanchéité latérale même en cas de variations dimensionnelles de l'échantillon.

L'autre face du disque PVC est liée électriquement à la cible située en haut du porte échantillon. Cette dernière est réalisée à partir d'un circuit imprimé. Cette cible est centrée dans une pièce comportant une partie conique. Les dimensions de ce cône permettent d'assurer le centrage du porte-échantillon dans la couronne qui comporte des orifices coniques. L'extrusion au dessus assure une surface de contact suffisante pour que l'ensemble soit stable. Ces différents éléments garantissent la qualité du contact entre la cible et les contacteurs lors du mouvement ascendant (B.2a)). Le choix de portées coniques entre la couronne et le porte-échantillon permet à ce dernier de se recentrer correctement à la suite de la pesée.

La tige permet de faire passer les fils électriques du capteur jusqu'à la cible et d'assurer qu'il n'y ait pas de contact entre la couronne et le porte échantillon lors de la pesée. Deux extrusions à chacune de ses extrémités assurent le centrage. Son diamètre est suffisamment faible pour garantir l'absence de contact avec la couronne lors de la pesée (B.2b)).

La partie supérieure du porte-échantillon présente des vides afin de limiter le poids mais surtout pour pouvoir utiliser le dispositif dans une procédure automatisée de

mesure du coefficient de diffusion en régime permanent. Il suffit pour cela d'enlever le disque PVC et de placer de l'autre côté de l'échantillon une coupelle contenant une solution saline. Le dispositif ne sert plus alors qu'à peser les portes-échantillon.

Enfin, les entretoises servent à la fois de pieds et assurent la rigidité de l'ensemble en permettant le serrage des différents éléments.

B.2.4 Ensemble mobile

Cet ensemble réalise les mouvements verticaux assurant la lecture de l'humidité en face arrière par contact temporaire et la pesée. Il permet également de changer d'échantillons lors d'un mouvement de rotation. Il est construit autour d'un vérin à vis sans fin (EMC32-12, Rexroth, Lohr am Main, Germany). Celui-ci est fixé sur une platine reposant sur une plaque en PVC via trois pieds réglables pour assurer l'alignement avec le plateau de pesée et les contacteurs. Le vérin est activé via un moteur à courant continu. Trois positions verticales sont définies :

- une position basse pour la pesée,
- une position haute pour le contact temporaire cible/contacteurs,
- une position intermédiaire pour changer d'échantillon lors du mouvement de rotation horizontal.

Les positions basse et intermédiaire sont définies par deux photodiodes. En effet, une structure montée sur le vérin comporte un doigt qui par son passage entre les photodiodes va donner un signal au système de contrôle qui va arrêter le moteur. Les positions verticales des photodiodes et du doigt peuvent être réglées afin d'ajuster le dispositif. Ces différents éléments sont visibles en figure B.7 a). Ces réglages permettent de définir un compromis entre la vitesse souhaitée pour une acquisition (plus les positions sont rapprochées plus l'exécution sera rapide) et le niveau de sécurité nécessaire. En effet, plus la position intermédiaire est basse plus le risque que les pieds du porte-échantillon touchent le plateau de pesé est élevé. De même, plus la position basse est haute plus le risque que le porte-échantillon touche la couronne durant la pesée est important.

La position haute est définie par un contact entre la cible et un contacteur. Ce contact coupe directement l'alimentation du moteur. Celle-ci est rétablie par le système de contrôle après la mesure d'humidité. Ce dispositif est visible en figure B.7 b). Afin de ne pas risquer un endommagement du dispositif suite à une avarie du système de contrôle, un autre contacteur permet également de limiter la course du vérin vers le bas.

Sur la partie supérieure du vérin est fixé un plateau tournant entraîné par un moteur (M-URM80, Newport Corporation, Irvine, United States). Celui-ci assure une précision angulaire de 0.01° . La couronne avec les perçages coniques est centrée dans l'orifice du moteur via une portée cylindrique.

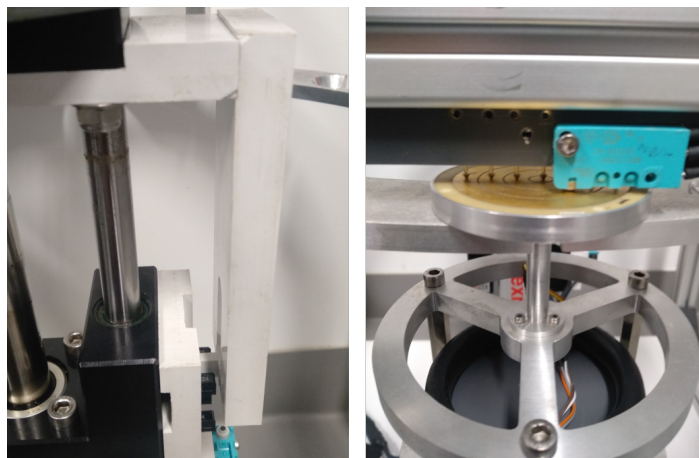


FIGURE B.7 – de gauche à droite : a) Structure permettant de définir les positions basses et intermédiaire, b) Contacteur définissant la position haute

B.2.5 Contacteurs

Les contacteurs assurant la lecture de l'humidité relative sont maintenus dans un support en PVC comportant des logements cylindriques. Celui-ci est placé sur une structure en profilés d'aluminium fixée sur la même plaque en PVC que le vérin. Elle permet le réglage de la hauteur des contacteurs, ce qui définit la position haute du vérin. Afin d'assurer un bon contact avec la cible, le support autorise de légers réglages angulaires et latéraux. Il dispose également d'un logement accueillant le contacteur de fin de course dont la position est aussi réglable.

B.3 Contrôle du dispositif

Le contrôle automatisé du dispositif via un programme développé sur *Microsoft Visual Basic* a constitué l'une des problématiques du développement. En effet, le dispositif est constitué de nombreux appareils devant pouvoir interagir entre eux. En particulier, certains de ces appareils ont montré des interactions qui n'étaient pas prévues a priori et qui expliquent certains des choix technologiques. En partant d'un cycle de fonctionnement du dispositif, différents choix de conception et leur réalisation seront développés.

B.3.1 Cycle de fonctionnement

Le schéma en figure B.8 présente le fonctionnement du dispositif sur le cycle de mesure d'un échantillon tel qu'il a été utilisé pour obtenir les résultats du chapitre 6. L'échantillon est d'abord mis en position de mesure lors du mouvement de rotation horizontal. Une première mesure de l'humidité relative en face arrière est ensuite effec-

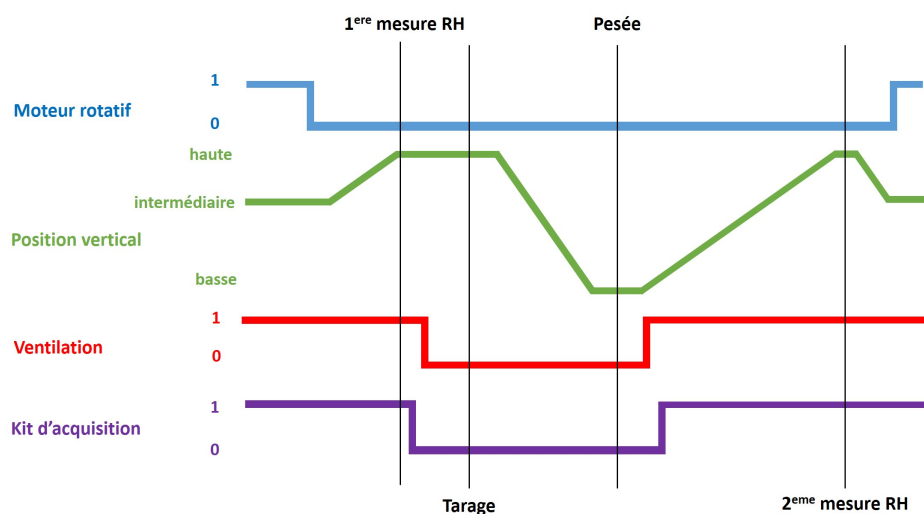


FIGURE B.8 – Schéma explicatif du fonctionnement du robot

tuée. On procède ensuite à un tarage de la balance avant de peser le porte-échantillon. Une seconde mesure d'humidité relative est ensuite réalisée avant de mettre le porte-échantillon en position intermédiaire et de relancer un cycle. Les valeurs d'humidité relative utilisées comme données brutes sont la moyenne des deux mesures. On notera par ailleurs que lorsque l'ensemble des échantillons a été traité, le plateau tournant va retourner à sa position de référence définie par un élément physique dans le moteur. Cette étape va permettre d'éviter une dérive à long terme de la position angulaire de la couronne. Les durées des différentes étapes représentées sur le schéma ne sont pas proportionnelles à la réalité.

La relative complexité du fonctionnement est due en premier lieu à la nécessité d'éteindre la ventilation lors du tarage et de la pesée. La figure B.9 montre la comparaison entre deux essais où un porte échantillon vide a été pesé par le dispositif avec ou sans ventilation. Comme on peut le constater, la ventilation entraîne une oscillation du plateau de pesée générant un bruit sur la lecture de la masse allant jusqu'à environ 0,15g. Sur des panneaux de fibres, cette perturbation est du même ordre de grandeur que la variation massique à mesurer. Il était donc absolument obligatoire de pouvoir éteindre la ventilation, le bruit correspondant alors à la précision de la balance. A noter que les résultats expérimentaux présentés au chapitre 6 ont un bruit plus important car un compromis est fait concernant le temps d'arrêt de la ventilation. En effet, un temps d'arrêt trop important altère la qualité de la régulation.

Cependant, l'arrêt de la ventilation a généré un problème inattendu. En effet, il est apparu qu'à ce moment, de manière apparemment aléatoire, il arrivait que le kit d'acquisition des capteurs d'humidité/température interrompe ses mesures. L'origine de ce phénomène n'a pas pu être formellement identifiée. Nous soupçonnons cependant une perturbation électromagnétique. Quoiqu'il en soit, le seul moyen de reprendre l'acquisition est alors d'éteindre puis de rallumer le kit.

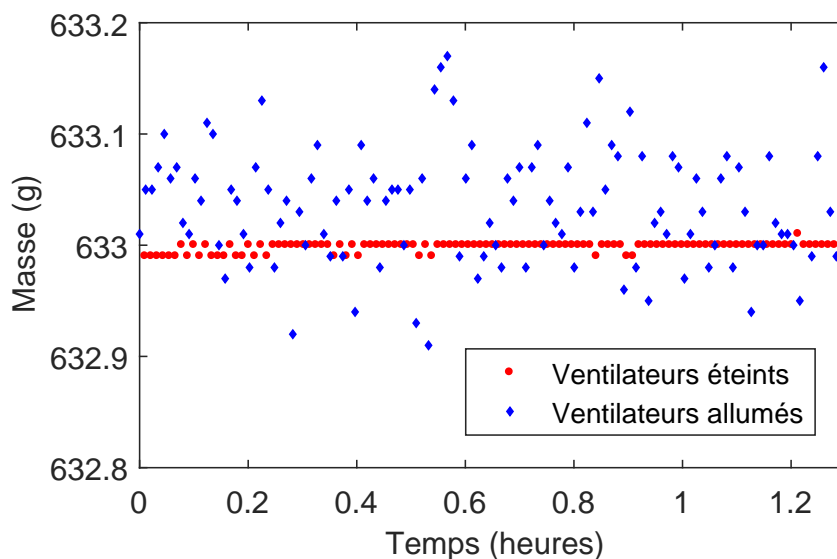


FIGURE B.9 – Comparaison des résultats de deux essais de pesé d'un porte échantillon : ventilation allumée ou éteinte.

Le plateau tournant, la balance et le thermocryostat dispose d'une interface de communication RS232 permettant de les contrôler directement depuis le programme. Pour les autres composant, il a été nécessaire de réaliser un boîtier de contrôle, couplé à une unité de communication (34970A, Agilent Technologies, Santa Clara, USA) disposant d'une interface de communication RS232.

B.3.2 Boîtier de contrôle et unité de communication

Ce boîtier de contrôle (visible ouvert et fermé en figure B.10), couplé avec l'unité de communication répond à plusieurs objectifs :

- permettre le contrôle automatisé des différents éléments et la lecture des grandeurs physiques,
- permettre le contrôle manuel de certains éléments dans un soucis pratique,
- centraliser et gérer les alimentations électriques des différents composants.

Concernant le premier point, plusieurs éléments sont utilisés. En particulier, pour la gestion des mouvements verticaux du vérin, un circuit imprimé (visible en figure B.10) a été réalisé. Celui-ci permet de gérer le sens de rotation du moteur via un pont en H, la lecture de l'état des photodiodes ainsi que celui des contacteurs de position. Pour la lecture des valeurs de l'humidité relative en face arrière de l'échantillon et dans l'enceinte, un kit d'acquisition a directement été incorporé au boîtier. L'alimentation du kit peut être coupée via l'unité de communication. De la même manière, le fonctionnement des ventilateurs ainsi que la pompe du système de remplissage sont

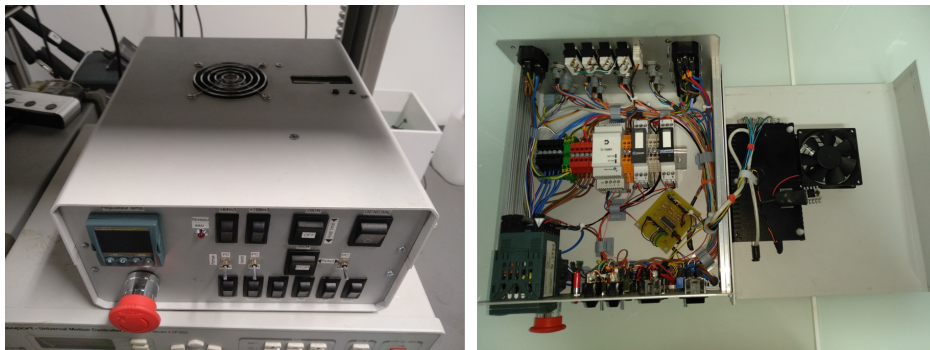


FIGURE B.10 – Photo du boîtier de contrôle fermé (gauche) et ouvert (droite)

contrôlés via cette unité. Par ailleurs, on notera que le dispositif de contrôle PID de la température a aussi été incorporé au boîtier.

Pour des raisons pratiques, notamment à la mise en route des essais et lors des phases de test, il a été décidé de permettre le contrôle manuel de certains composants. Le moteur entraînant le vérin peut ainsi être géré directement depuis le boîtier, de même que la ventilation. Le passage du mode manuel à automatique se fait de manière électromécanique via des interrupteurs.

Enfin, le boîtier permet de centraliser l'alimentation des différents équipements.

Titre : Transferts couplés chaleur/masse dans les matériaux de construction biosourcés : investigation expérimentale et théorique du non-équilibre local

Mots clés : énergie du bâtiment, matériaux biosourcés, transferts couplés, méthode inverse

Résumé : L'intérêt croissant pour les matériaux biosourcés dans le domaine de la construction se heurte à des difficultés quant à la simulation de leur comportement hygrothermique. En particulier, les matériaux isolants tels que les panneaux de fibres concentrent toutes les difficultés car ils sont peu conducteurs thermiquement, très hygroscopiques et très diffusifs à la vapeur d'eau. Conséquemment, en régime transitoire le couplage chaleur masse est exacerbé et les phases de l'eau ne sont pas à l'équilibre localement.

Afin de mettre en évidence ce second phénomène, un nouveau dispositif expérimental a été développé. Il permet de soumettre un échantillon de quelques centimètres d'épaisseur à une perturbation de l'humidité relative sur sa face avant puis de mesurer simultanément l'évolution de l'humidité relative sur sa face arrière et de sa masse. En situation de non-équilibre, il existe un déphasage entre ces deux grandeurs que la formulation de transferts couplés

classique n'arrive pas à prédire. Afin d'obtenir une prédiction correcte, une nouvelle formulation a été utilisée. Celle-ci se base sur l'emploi de fonctions mémoires caractérisant la diffusion microscopique. De manière à démontrer la capacité prédictive de la nouvelle formulation, ces fonctions ont été déterminées avec des essais gravimétriques réalisés sur de très petits échantillons à l'aide d'une balance à suspension magnétique. En parallèle, une analyse rigoureuse du couplage chaleur masse dans ces matériaux a permis de souligner l'impact sur leur caractérisation de différents paramètres macroscopiques.

L'utilisation de la nouvelle formulation alimentée par les fonctions mémoires et les différents paramètres macroscopiques permet une excellente prédiction de l'humidité relative et de la masse. Cette nouvelle formulation validée expérimentalement est désormais utilisable dans des logiciels de simulation énergétique du bâtiment.

Title : Coupled heat and mass transfers in biosourced construction materials: experimental and theoretical investigation of local non-equilibrium

Keywords : building energy, biosourced materials, coupled transfers, inverse method

Abstract : The growing interest in biosourced materials in the construction sector is confronted with difficulties in simulating their hygrothermal behavior. Insulating materials such as fiberboard concentrate all the difficulties because they are not very thermally conductive, very hygroscopic and very diffusive to water vapor. Consequently, in transient state, heat and mass coupling is exacerbated, and the phases of water are not in equilibrium locally.

In order to highlight this second phenomenon, a new experimental device has been developed. It allows to subject a sample a few centimeters thick to a disturbance of relative humidity on its front face and then to simultaneously measure the evolution of relative humidity on its back face and its mass. In a situation of non-equilibrium, there is a phase shift between these two quantities that the classic coupled

transfer formulation cannot predict. In order to obtain a correct prediction, a new formulation was used.

It is based on the use of memory functions characterizing microscopic diffusion. In order to demonstrate the predictive capacity of the new formulation, these functions have been determined with gravimetric tests performed on very small samples using a magnetic suspension balance. In parallel, a rigorous analysis of the heat and mass coupling in these materials made it possible to highlight the impact of different macroscopic parameters on their characterization.

The use of the new formulation fed by the identified memory functions and the various macroscopic parameters allows an excellent prediction of relative humidity and mass. This new formulation, experimentally validated, can now be used in energy simulation of the building.

