HAL
open science

Compréhension des mécanismes de transferts d'eau dans le bois

Meng Zhou

To cite this version:

Meng Zhou. Compréhension des mécanismes de transferts d'eau dans le bois. Matériaux composites et construction. Université Paris-Est, 2018. Français. NNT : 2018PESC1044 . tel-02084019

HAL Id: tel-02084019

https://pastel.hal.science/tel-02084019

Submitted on 29 Mar 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.

Thèse de doctorat

pour obtenir le grade de docteur délivré par

Université Paris-Est

École doctorale “Science, Ingénierie et Environnement”

présentée et soutenue publiquement par

Meng ZHOU

le 9 novembre 2018

Compréhension des mécanismes de transferts d’eau dans le bois

---

Devant le jury composé de:

GRIL Joseph	Directeur de recherche	Rapporteur
MARMOTTANT Philippe	Directeur de recherche	Rapporteur
ALMEIDA PERRE Giana	Maître de conférences	Examinatrice
BORNERT Michel	ICPEF	Examinateur
FORTERRE Yoël	Directeur de recherche	Examinateur
CARE Sabine	Directeur de recherche	Co-directrice de thèse
COURTIER-MURIAS Denis	Chargé de recherche	Co-encadrant de thèse
COUSSOT Philippe	IGPEF	Directeur de thèse

Remerciements

Ces travaux de thèse sont un fruit de collaboration avec beaucoup de personnes, sans qui cette thèse n'aurait jamais pu être achevée.

Je tiens en premier lieu à remercier Philippe Coussot qui m'a attribué ce sujet de recherche et m'a dirigé pendant ces trois années de recherche. Tu m'as montré un très bon exemple du chercheur avec ton efficacité, tes conseils toujours pertinents et tes nouvelles idées pour la recherche. Tu es également un très bon directeur : tu es toujours disponible et prêt à aider ses élèves lorsqu'ils rencontrent un problème scientifique. J'ai beaucoup appris en travaillant avec toi et je suis certaine que mes expériences me serviront dans ma future carrière professionnelle. Je tiens également à exprimer ma gratitude à Sabine Caré pour sa direction dans le domaine du bois. Merci à ta disponibilité, ta rigueur scientifique et ton enthousiasme pour le bois. Merci de m'avoir fait découvrir le monde du bois : c'est un sujet très intéressant. Le bois reste toujours un matériau naturel mystérieux, mais je suis très contente de pouvoir révéler avec vous une petite partie de tous ses secrets cachés. Merci aussi à ta bonne humeur et à tes nombreux encouragements.

Je souhaite remercier mon encadrant Denis Courtier-Murias pour m'avoir formée pour les manips RMN et IRM, pour ton aide sur les traitements de données, pour ton soutien pendant toute ma thèse, mais aussi pour ta bonne humeur et des discussions scientifiques ou hors-scientifiques. Je tiens à remercier Paméla Faure de m'avoir formée pour les images IRM.

Je souhaite particulièrement remercier Stéphane Rodts, pour tous ses savoir-faire dans le domaine de l'IRM et sa professionnalité. Merci à lui pour toutes les séquences RMN, la modélisation, des discussions et ses suggestions pertinentes. Il a été également mon professeur d'IRM en master SMCD, c'était grâce à lui que j'ai eu déjà une bonne base de connaissances sur RMN avant ma thèse et que j'ai pu devenir rapidement indépendante pour les manipes.

J'adresse ces remerciements après la soutenance aux membres du jury, Giana Almeida Perré, Michel Bornert et Yoël Forterre qui ont accepté d'examiner mon travail et ont donné des remarques pertinentes afin d'améliorer ce manuscrit ; et je remercie particulièrement à Philippe Marmottant et joseph Gril d'avoir évalué ma thèse et pour les discussions scientifiques passionnantes lors de ma soutenance. Merci à Yoël Forterre d'avoir présidé le jury.

Je tiens à remercier l'équipe technique transversale du Laboratoire Navier : merci à Davide Hautemayou de m'avoir aidé à désigner et installer tous les dispositifs expérimen-

taux, que ce soit pour les manipes macroscopiques ou à l'IRM ; merci à Cédric Mezière de m'avoir aidé à découper des échantillons de bois ; merci à Pascal Moucheront pour le soutien technique ; merci à Christophe Courrier pour les installations électroniques, et un grand merci à toi d'avoir sauvé mon ordinateur personnel ! Merci à Jaime Gil pour tes aides à l'IRM, pour tes innombrables blagues et vive le chocolat et les mangas ! Je souhaite remercier Patrick Aimedieu et encore une fois Michel Bornert pour les manipes de tomographie au laboratoire Navier ; Un grand merci aux chercheurs du Synchrotron Soleil, King Andrew de la ligne PSICHE pour les manipes qui ont été réalisées avant ma thèse et les échanges sur notre article ; Timm Weitkamp, Mario Scheel et Jonathan Perrin de la ligne Anatomix pour l'accueil et leur aide. Merci à Sabine Caré et Marie Bonnet d'avoir réalisé les manipes, récupéré les données et reconstruit les images pour les échantillons de charme.

Un immense merci à tous mes collègues au Laboratoire Navier, tout particulièrement du site Kepler. Merci tout d'abord à François Chevoir de m'avoir accueilli au Navier. Merci à tous les permanents, Xavier, Olivier, Julie, Yacine, Florence, Jean-Noël, Abdoulaye, Anaël, pour cette ambiance de travail chaleureuse. Merci à Nathalie Cherer, Sandrine Coqueret, Delhia Adelise, Carmen Sanchez pour leur aide administrative et leur gentillesse. Merci à tous les doctorants et post-doc à Képler pour ces trois ans mémorables, pour votre compagnie, vos soutiens, nos discussions sur des sujets très vastes sur le chemin à la cantine ou pendant le repas. J'en garderai un très bon souvenir pendant toute ma vie. Merci à Marie pour tout le temps partagé dans notre bureau K210, merci à Blandine pour ta compagnie depuis le master SMCD, à Xiao pour toutes les propositions de restaurant, à Asmaa pour ta douceur et tes très beaux sourires, à Aymeric, Francesco et Nidal de nous faire gagner tellement du temps pour la cantine ! Merci à Gaétan de me donner la recette d'hydrogels et tous tes idées avec. Merci Thibault pour ta très bonne humeur, et désolée d'avoir cassé un de tes tout premiers échantillons... Merci Leila pour ta dynamique, nos discussions, nos sorties aux restaurants, et surtout ta compagnie pour la dernière année dans le monde du bois ! Merci à Elie d'être toujours positif et chaleureux ! Merci à Mao, Oumar, Ihassan, Diogo, Alexandros, sans oublier les anciens doctorants, François, Michel, Ilham, Alizée, Yousra, Rémy, Jennifer, Simon et Jules.

Enfin un immense merci à mes parents pour leur soutien de l'autre bout de la planète ! Merci infiniment Samuel et sa famille qui m'ont rendu heureuse durant ces dernières années en France.

Table des matières

Introduction **1**

1 État de l'art **5**
1.1 Physique des transferts de liquide dans un milieu poreux 7
1.1.1 Imbibition capillaire 7
1.1.2 Séchage 14
1.2 Structure et propriétés physiques du bois 23
1.2.1 Formation du bois et structure macroscopique 24
1.2.2 Structure microscopique du bois 28
1.3 Transferts d'eau dans le bois 38
1.3.1 Relation eau-bois 38
1.3.2 Revue bibliographique sur les transferts d'eau dans le bois 43
1.4 Objectif de la thèse 52
1.5 Références 53

2 Matériels et Méthodes **63**
2.1 Matériaux 65
2.1.1 Propriétés des échantillons de bois 65
2.1.2 Matières premières 71
2.2 Mesures macroscopiques 75
2.2.1 Tests d'imbibition 75
2.2.2 Séchage 78
2.3 Résonance Magnétique Nucléaire du proton 80
2.3.1 Principe de la RMN 82
2.3.2 Séquences RMN 86
2.3.3 Imagerie par Résonance Magnétique 88
2.3.4 Conditions expérimentales 92
2.3.5 Exemple : effets de bords étudiés par IRM 95
2.4 Microtomographie aux rayons X 99
2.4.1 Principes 99
2.4.2 Protocoles expérimentaux 101
2.5 Les hydrogels - un matériau modèle 104
2.5.1 Préparation des hydrogels 104
2.5.2 Tests d'imbibition 106
2.6 Références 106

3 Imbibition capillaire dans le bois de feuillu **113**
3.1 Tests d'imbibition macroscopiques . . . 115
3.1.1 Imbibition d'eau dans quatre essences de feuillu . . . 115
3.1.2 Imbibition de l'huile dans le peuplier . . . 118
3.1.3 Imbibition d'eau dans le peuplier . . . 122
3.1.4 Discussion et conclusion . . . 127
3.2 Observations par RMN et IRM . . . 128
3.2.1 Mesures du temps de relaxation . . . 128
3.2.2 Observations par images IRM . . . 134
3.2.3 Profils d'huile de silicone . . . 135
3.2.4 Profils d'eau liée et d'eau libre . . . 136
3.2.5 Discussions et Conclusion . . . 142
3.3 Observations par microtomographie aux rayons X . . . 143
3.3.1 Protocole d'observation . . . 143
3.3.2 Premières observations dans le plan "RT" . . . 144
3.3.3 Formes des interfaces eau-air . . . 147
3.3.4 Dynamique des interfaces planes . . . 150
3.3.5 Pénétration dans les fibres . . . 152
3.3.6 Le cas de l'huile de silicone . . . 153
3.3.7 Discussions et Conclusion . . . 155
3.4 Proposition du mécanisme de transferts d'eau dans le bois de feuillu . . . 156
3.5 Conclusion du chapitre . . . 157
3.6 Annexe : Modélisation de la diffusion d'eau liée . . . 158
3.7 Références . . . 160

4 Matériau modèle - Hydrogels **163**
4.1 Imbibition capillaire dans des hydrogels saturés . . . 164
4.2 Dynamique d'interface dans des hydrogels déshydratés . . . 166
4.2.1 Généralité . . . 166
4.2.2 Régime transitoire . . . 168
4.2.3 Nature du deuxième régime . . . 169
4.2.4 Formes d'interface . . . 170
4.2.5 Front de déformation . . . 172
4.2.6 Discussion . . . 172
4.3 Analyse des résultats . . . 175
4.4 Conclusion . . . 179
4.5 Références . . . 180

5 Séchage du bois **183**
5.1 Séchage d'un milieu poreux modèle saturé de liquide . . . 184
5.2 Séchage longitudinal du bois . . . 187
5.2.1 Séchage de dodécane . . . 188
5.2.2 Séchage d'eau . . . 191
5.2.3 Conclusion . . . 200
5.3 Séchage du bois selon les directions transversales . . . 201
5.3.1 Suivi de masse macroscopique . . . 201

5.3.2 Distribution dans l'échantillon 203
5.3.3 Discussion 206
5.4 Conclusion 207
5.5 Références 207

Conclusion générale et perspectives **209**

Introduction

Le bois est peut-être un des matériaux les plus anciens exploités par l'être humain. Face aux contraintes des ressources énergétiques et du réchauffement climatique depuis l'ère industrielle, le bois étant une ressource naturelle et renouvelable, tend à redevenir un matériau de construction de choix. Contenant environ 70% d'air, le bois est un matériau poreux et léger, possède des propriétés mécaniques excellentes. De plus, du fait de son caractère hygroscopique, le bois fournit le confort aux occupants d'une habitation en régulant l'humidité dans l'air : il peut absorber les molécules d'eau dans l'air humide et les restitue lorsque l'humidité dans l'air devient plus faible. Par ailleurs, son aspect esthétique est une source d'inspiration pour les architectes aux quatre coins du monde, de la Suède au Japon en passant par la Chine.

Les transferts d'eau dans le bois jouent un rôle important dans de nombreuses situations. D'origine biologique, les plantes disposent d'un système hydraulique complexe, capable de transporter des litres d'eau par jour de la racine jusqu'à la cime. Après son abattage, le bois se trouve dans un état « vert », dont la teneur en eau peut atteindre plus de 800 kg/m^3. Pour que ses propriétés poreuses soient optimales, il faut donc impérativement sécher le bois avant de l'utiliser en tant que matériau de construction. Cependant, lors de son utilisation, la sensibilité du bois à l'humidité dans l'environnement pose des problèmes et ses applications sont ainsi limitées. Dans de nombreuses situations, les transferts d'eau au sein de ce matériau peuvent être conséquents : poutres exposées aux intempéries, poteaux immergés dans l'eau ou traverses de chemin de fer usagées. Les interactions entre l'eau et le bois entrainent alors des variations dimensionnelles : il gonfle en absorbant de l'eau et se rétracte lorsqu'il sèche. Par ailleurs, la présence d'eau avec les nutriments restant dans le bois conduisent parfois à une dégradation biologique du matériau (développement de moisissures et de champignons), la durée de vie du matériau est ainsi fortement réduite.

Dans l'industrie, on procède souvent à un traitement par imprégnation pour faire pénétrer des produits chimiques dans la structure poreuse du bois afin d'améliorer sa résistance à l'humidité et sa durabilité. Différentes méthodes existent selon les conditions d'exposition : le trempage direct dans des produits de préservation ou l'application de revêtements protecteurs peuvent être utilisés pour des bois placés en intérieur ; pour des conditions d'humidité élevée (utilisation en extérieur), un traitement sous pression par autoclave est nécessaire pour assurer une pénétration homogène et une bonne rétention du produit chimique dans le matériau.

La compréhension des mécanismes de transferts d'eau dans le bois est donc essen-

tielle dans de nombreuses situations. Cependant, le phénomène reste encore mal appréhendé malgré des décennies de recherche. La difficulté particulière de l'étude sur la relation eau-bois est d'abord liée au fait que l'eau existe dans le bois sous trois formes : l'eau liée adsorbée dans les parois cellulaires, qui induit la déformation; l'eau libre qui circule dans les pores; et l'eau sous forme de vapeur dans l'air des pores. La difficulté est également liée à la complexité de la structure multi-échelle du bois. Dans les modèles actuels, le bois est souvent considéré comme un matériau poreux neutre à la structure bien définie et avec une certaine distribution de tailles de pores. Ces types de modèle permettent d'expliquer partiellement la dynamique des transferts d'eau dans le bois, mais se révèlent souvent inadéquats, soit parce qu'ils ne prennent pas en compte correctement les différents types d'eau et la physique des phénomènes mis en jeu, soit parce qu'ils ne s'appliquent que dans des conditions limitées. Des contradictions entre un milieu poreux modèle et des observations dans le bois ont été signalées mais restent encore inexpliquées. Finalement, il ne semble pas exister d'analyse des résultats expérimentaux avec une approche physique de l'imbibition capillaire dans un milieu poreux.

Notre travail vise donc à fournir de nouvelles observations concernant les transferts d'eau dans le bois à différentes échelles et à comprendre les mécanismes mis en jeu. Nous nous intéresserons particulièrement aux comportements spécifiques de l'eau liée et de l'eau libre, ainsi qu'aux effets éventuels de l'interaction entre ces deux types d'eau sur la dynamique des transferts. De façon à distinguer ces interactions nous utiliserons notamment des liquides apolaires, qui « voient » le bois comme un milieu poreux "neutre" (ils ne s'adsorbent pas dans les parois, donc n'induisent pas de déformations de la structure) et nous comparerons les résultats avec ceux obtenus avec de l'eau. Par ailleurs, pour distinguer les dynamiques de l'eau libre et de l'eau liée à l'intérieur même de l'échantillon nous utiliserons l'Imagerie par Résonance Magnétique. Enfin la microtomographie aux rayon X synchrotron nous permettra d'obtenir des images des interfaces eau-air à travers ces milieux complexes. Nous nous intéresserons d'abord au phénomène d'imbibition dans le bois, puis aux mécanismes du séchage du bois. Parmi les deux familles principales du bois, nous avons choisi d'étudier le feuillu, qui a la structure poreuse a priori la plus simple, et en particulier deux essences : le peuplier et le charme.

Le manuscrit est composé de 5 chapitres :

Le chapitre 1, qui fait le point de l'état de l'art, est composé de trois parties principales. La première partie présente les concepts physiques concernant les transferts de liquide en milieux poreux, et notamment les outils de base développés pour décrire les phénomènes d'imbibition et de séchage. La seconde partie présente la structure multi-échelle et les propriétés physiques du bois essentielles pour interpréter nos observations expérimentales. Dans la dernière partie on passe en revue les études existantes concernant l'imbibition et le séchage du bois, et on discute des problématiques de recherche dans ce domaine. Le chapitre se termine par une présentation de l'objectif de la thèse.

Le chapitre 2 présent les matériaux utilisés et les méthodes expérimentales. On commence par décrire l'échantillonnage et la structure interne des échantillons. Une ana-

lyse détaillée de la structure des échantillons est ensuite présentée, indispensable pour comprendre la suite de cette thèse. Nous détaillons ensuite les méthodes de mesure et les protocoles expérimentaux des techniques utilisées : techniques classiques, comme le test d'imbibition ou les mesures de déformation, ou plus sophistiquées, comme les techniques d'imagerie (Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) et de microtomographie aux rayons X.

Le chapitre 3 présente les principaux résultats expérimentaux principaux de la thèse, et concerne l'imbibition dans le bois. On y trouve trois parties principales. Dans la première partie, les observations macroscopiques d'imbibition avec deux types de liquide, (eau et huiles apolaires) sont présentées, qui nous permettent d'avoir une idée globale des caractéristiques du phénomène. Dans la seconde partie, on étudie les dynamiques de pénétration de l'eau liée et de l'eau libre, ce qui nous permet de mieux comprendre certains effets observés avec les techniques classiques. La dernière partie présente des observations par microtomographie aux rayons X des interfaces eau-air au sein du bois pendant l'imbibition qui nous permettent de compléter notre compréhension des phénomènes. L'ensemble des résultats obtenus avec les différentes méthodes nous permet finalement de proposer un schéma des mécanismes d'imbibition dans le bois.

Dans le chapitre 4 on étudie l'imbibition de matériaux particuliers (les hydrogels) que l'on propose de considérer, au moins vis-à-vis de ce phénomène, comme des matériaux modèles du bois car ils sont également capables d'adsorber de l'eau sous forme d'eau liée. On montre qu'il est possible, avec ces matériaux, de reproduire les effets observés avec le bois, et on propose un modèle physique permettant de décrire les phénomènes physiques essentiels mis en jeu.

Le chapitre 5 est finalement consacré au séchage du bois, principalement observé par IRM. Des expériences de séchage sont menées avec deux types de liquide (eau et dodécane) dans les trois directions du bois. Nous effectuons une analyse quantitative des résultats et proposons un modèle simple pour expliquer la dynamique de séchage.

Enfin, une synthèse du travail effectué et les perspectives à la suite de cette étude sont présentées à la fin de ce manuscrit de thèse.

Chapitre 1

État de l'art

Sommaire

1.1 Physique des transferts de liquide dans un milieu poreux 7
1.1.1 Imbibition capillaire 7
1.1.1.1 Tension superficielle et pression capillaire 7
1.1.1.2 Loi de Darcy et perméabilité 9
1.1.1.3 Loi de Washburn 11
1.1.1.4 Imbibition capillaire dans un milieu poreux 12
1.1.2 Séchage 14
1.1.2.1 Évaporation 14
1.1.2.2 Séchage dans un milieu poreux granulaire 15
1.1.2.3 Séchage dans les tubes capillaires 20
1.2 Structure et propriétés physiques du bois 23
1.2.1 Formation du bois et structure macroscopique 24
1.2.1.1 Croissance des arbres 24
1.2.1.2 Cernes annuels dans le bois 26
1.2.1.3 Directions et plans de référence 27
1.2.2 Structure microscopique du bois 28
1.2.2.1 Résineux 28
1.2.2.2 Feuillus 31
1.2.2.3 Échelle pariétale 37
1.3 Transferts d'eau dans le bois 38
1.3.1 Relation eau-bois 38
1.3.1.1 États de l'eau dans le bois 38
1.3.1.2 Teneur en eau 39
1.3.1.3 Bois vert et point de saturation des fibres 39
1.3.1.4 Déformations hygromécaniques 40
1.3.1.5 Isotherme de sorption 40
1.3.1.6 Mouillabilité du bois 42
1.3.2 Revue bibliographique sur les transferts d'eau dans le bois 43
1.3.2.1 Imbibition dans le bois 43

1.3.2.2 Séchage du bois 50
1.4 Objectif de la thèse 52
1.5 Références 53

Le bois est un matériau hétérogène, qui dispose d'un système hydraulique poreux à travers lequel l'eau liquide peut circuler. Ses propriétés physiques du point de vue des phénomènes de transport, par exemple la perméabilité, la mouillabilité, etc., sont étroitement liées à ses composants et sa structure. De ce fait, dans ce premier chapitre, nous commençons par un rappel des propriétés de transport en milieux poreux « simples », autrement dit non hygroscopiques. Puis nous présentons la structure du bois à différentes échelles. Enfin nous passons en revue les travaux réalisés dans le domaine de l'imbibition ou du séchage du bois.

1.1 Physique des transferts de liquide dans un milieu poreux

1.1.1 Imbibition capillaire

1.1.1.1 Tension superficielle et pression capillaire

Une interface liquide-air est caractérisée par la tension superficielle, qui tend à réduire l'aire de cette interface. Supposons qu'on prenne un film de savon avec un cadre rectangulaire composé de trois parois fixes et d'une mobile. La largeur du film est de L. On étire le film par la paroi mobile de dx dans la direction perpendiculaire. Pour cela il faut fournir un travail Fdx, que l'on associe au gain d'énergie de surface E. On définit ce gain d'énergie comme la tension superficielle fois le gain d'aire γLdx. Dans ces conditions on en déduit alors la tension superficielle γ :

$$\gamma = \mathrm{F}/\mathrm{L} \tag{1.1}$$

dont l'unité est N/m.

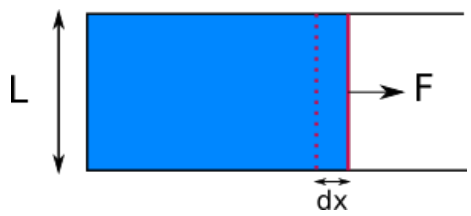


FIGURE 1.1 – Illustration de la tension superficielle. Un cadre rectangulaire déposé à la surface d'un liquide, avec trois parois fixes et une mobile. On applique une force F sur la paroi mobile pour augmenter la surface délimitée par le cadre Ldx.

Des tensions interfaciales entre deux phases quelconques peuvent également être définies, en étendant la définition ci-dessus. Lorsque trois phases coexistent, il existe en général une ligne de contact, correspondant à l'intersection des volumes des trois phases. L'exemple classique de cette situation est celle de la goutte posée sur une surface solide (voir Fig.1.2). Dans ce cas on peut définir l'angle de contact θ_w comme l'angle formé entre la tangente à la surface libre de la phase liquide et la surface solide. Dès le début du XIXème siècle, Young (1805) a établi la relation entre les forces exercées entre les trois phases (solide-liquide-vapeur) et l'angle de contact dans ce cas (voir Fig.1.2) :

$$\gamma_{sv} = \gamma_{sl} + \gamma_{lv} cos(\theta_w) \tag{1.2}$$

où γ_{sv} est la tension interfaciale solide-vapeur, γ_{sl} la tension interfaciale solide-liquide, γ_{lv} la tension interfaciale liquide-vapeur. On parle d'un bon mouillage (good wetting, l'indice $_w$ pour "wetting" en anglais) quand θ_w est inférieur à 90°, et d'un mauvais mouillage lorsque θ_w est supérieur 90°. Dans le cas de l'eau, si l'eau mouille bien une surface solide, on dit que la surface solide est hydrophile ; dans le cas contraire, on parle d'une surface solide hydrophobe.

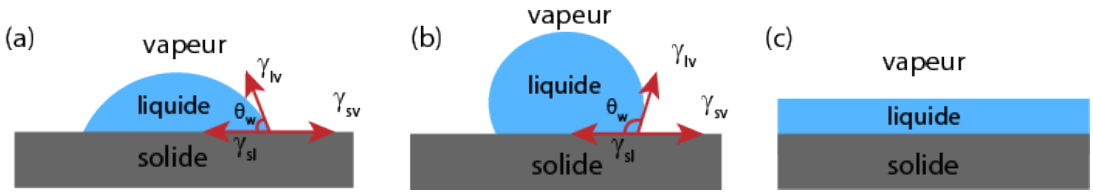


FIGURE 1.2 – Schéma montrant une goutte posée sur un solide horizontal. **(a)** un bon mouillage avec $\theta_w < 90°$ et **(b)** un mouvais mouillage avec $\theta_w > 90°$. Remarquons que pour un mouillage parfait **(c)** où $\theta_w = 0°$, le liquide tend à s'étendre indéfiniment sur la surface du solide jusqu'à former un film d'eau.

Imaginons maintenant qu'un tube fin de rayon R est mis en contact avec de l'eau. Si l'eau mouille bien la paroi du tube (autrement dit si le tube est hydrophile), l'eau monte dans le tube sous l'action des forces d'adhésion entre l'eau et la paroi. L'interface eau-air est alors une surface courbe, dont l'intersection avec la paroi forme un angle égal à l'angle de contact θ. En l'absence d'effets de gravité associés à la différence de pression gravitaire entre les deux points extrêmes de cette interface, la pression doit être uniforme dans le liquide le long de l'interface. Comme dans elle est uniforme de l'autre côté de l'interface (dans l'air) et égale à la pression ambiante, on déduit de la loi de Laplace que la courbure de l'interface est uniforme (puisque le saut de pression est uniforme). On peut donc en conclure qu'en l'absence d'effets de la gravité autour de l'interface, celle-ci a la forme d'une calotte sphérique dont la hauteur est définie par l'angle de contact avec la paroi. Un angle de contact de 0° donne ainsi une forme hémisphérique, alors qu'un angle de 90° donne un plan.

On peut maintenant exprimer le saut de pression à travers l'interface eau-air :

$$P_0 - P_1 = \frac{2\pi r \gamma_{lv}}{\pi r^2} = \frac{2\gamma_{lv} cos(\theta_w)}{R} \tag{1.3}$$

où r est le rayon dessinant la courbe de l'interface et R le rayon du capillaire ($r cos(\theta_w) = R$) ; P_0 la pression atmosphérique et P_1 la pression de liquide située juste sous l'interface. Si l'angle de contact est inférieur à 90°, $P_0 > P_1$, la pression dans le liquide est donc inférieure à celle de l'air ambiant.

Par ailleurs, la pression au sein du liquide au pied de la colonne d'eau reste identique à la pression ambiante (atmosphérique). L'équilibre est donc atteint lorsque la pression hydrostatique ($\rho g h$) compense la dépression capillaire à l'interface :

$$P_0 = P_1 + \rho g h \tag{1.4}$$

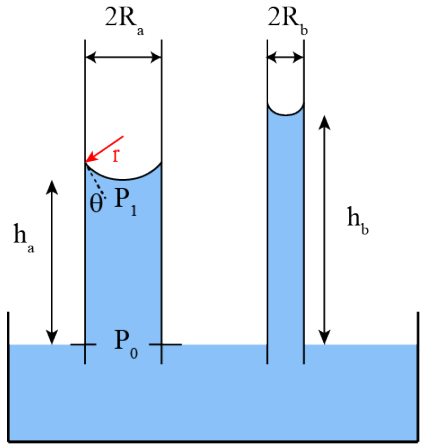


FIGURE 1.3 – Représentation de la remontée capillaire dans des tubes capillaires. Dans deux tubes avec différent rayon ($R_a > R_b$), la colonne d'eau dans le petit tube est plus haute que celle dans le grand tube ($h_a < h_b$).

où ρ est la densité de l'eau ($1 \times 10^3\ kg/m^3$), g l'accélération de la pesanteur = 9,8 N/kg et h la hauteur de la colonne en m.

Combinant l'Eq.1.3 et l'Eq.1.4 nous obtenons finalement l'expression de la hauteur d'équilibre de montée capillaire dans un tube (loi de Jurin) :

$$h_{max} = \frac{2\gamma_{lv} cos(\theta_w)}{\rho g R} \tag{1.5}$$

D'après l'Eq.1.5 nous en déduisons que plus le rayon du capillaire est petit, plus la dépression est forte, et plus la hauteur de l'interface à l'équilibre est grande (voir Fig.1.3).

1.1.1.2 Loi de Darcy et perméabilité

L'écoulement d'un fluide incompressible en régime permanent à travers un milieu poreux est décrit pas la loi de Darcy (1856) :

$$\nabla P = \frac{\mu}{k} \cdot \frac{Q}{S} \tag{1.6}$$

où ∇P est le gradient de pression entre deux points séparés d'une distance (Pa/m), μ la viscosité du fluide (P$a.s$), Q le débit du fluide à travers le milieu en m^3/s, S la section du milieu en m^2et k la perméabilité en m^2.

Par ailleurs, les équations du mouvement permettent, dans le cas d'un écoulement laminaire d'un fluide visqueux dans une conduite cylindrique de rayon R, de calculer directement la vitesse moyenne du fluide V en m/s (la loi de Poiseuille) :

$$V = \frac{R^2}{8\mu} \cdot \nabla P \tag{1.7}$$

Au sein d'un tuyau on a V = Q/S. Combinant l'Eq.1.6 et l'Eq.1.7 nous trouvons l'ex-

pression de la perméabilité k d'une conduite cylindrique :

$$k = \frac{R^2}{8} \tag{1.8}$$

Nous pouvons voir que la perméabilité augmente avec le carré du rayon de la conduite.

Ce résultat est généralisable aux milieux poreux : on s'attend à ce que la perméabilité augmente avec le carré de la taille des pores. Mais le coefficient dépend quant à lui de la structure exacte du milieu (notamment la connectivité et la tortuosité).

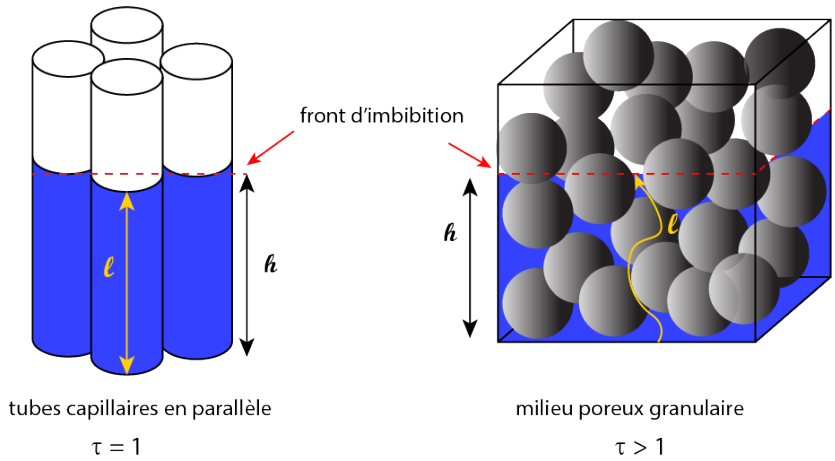


FIGURE 1.4 – Schéma de l'imbibition capillaire dans un milieu poreux composé de capillaires parallèles **(gauche)** et dans un milieu poreux granulaire avec un rayon de pore caractéristique de R **(droite)**.

Si le milieu poreux est composé de N conduites cylindriques parallèles de rayon R (voir Fig.1.4), on peut calculer le flux total Q à travers le milieu avec la loi de Poiseuille (voir Eq.1.7) :

$$Q = N\pi R^2 V = \frac{N\pi R^4 \nabla P}{8\mu} \tag{1.9}$$

Avec la loi de Darcy (voir Eq.1.6) on peut trouver l'expression de la perméabilité dans ce cas :

$$k = \frac{N\pi R^4}{8\mu S} \tag{1.10}$$

La porosité d'un milieu poreux est définie comme le rapport entre le volume des pores et le volume total du milieu. Pour un milieu poreux composé de conduites cylindriques parallèles dont la section totale est S, la porosité ε s'écrit comme :

$$\varepsilon = \frac{V_{pores}}{V_{total}} = \frac{N\pi R^2}{S} \tag{1.11}$$

Grâce à l'équation 1.11, nous obtenons la perméabilité du milieu en simplifiant l'équation 1.10 :

$$k = \varepsilon \frac{R^2}{8} \tag{1.12}$$

On peut considérer que un milieu poreux quelconque se représente comme un ensemble de conduites parallèles, puisqu'un liquide qui le traverse suit en moyenne un chemin dans une direction fixe (l'axe de l'échantillon), comme dans le cas d'une conduite (voir Fig.1.4). Ceci permet, si on connaît la taille des pores typiques et la porosité du milieu, d'estimer la perméabilité du milieu. Cependant, dans un tel calcul on néglige de nombreux aspects de la complexité du milieu, le plus important d'entre eux étant peut-être sa tortuosité. En effet, dans le cas des conduites droites, la distance l parcourue par le liquide dans les conduites droites est égale à la hauteur de l'échantillon h (ou de pénétration si il s'agit d'une imbibition). Ceci n'est évidemment pas le cas pour un milieu poreux quelconque, par exemple dans un milieu poreux formé par un empilement granulaire (voir Fig.1.4). On peut alors introduire la tortuosité τ (-) qui corrige la vraie distance l parcourue par le liquide par rapport à celle dans une conduite droite : $\tau = l/h$, on a alors $\tau \geq 1$. La perméabilité du milieu est alors une fonction de la taille des pores, de la porosité et de la tortuosité : $k(R, \varepsilon, \tau)$.

1.1.1.3 Loi de Washburn

Nous nous intéressons maintenant à l'imbibition spontanée dans un tuyau cylindrique. La pression de Laplace à l'interface eau-air exercée sur une hauteur h crée un gradient de pression qui entraîne l'écoulement du fluide. La loi de Darcy nous donne donc :

$$\nabla P = \frac{2\gamma cos(\theta)}{hR} = \frac{\mu}{k} V \tag{1.13}$$

où $V = \partial h / \partial t$ et h est la position du front d'imbibition.

La résolution de cette équation différentielle avec la condition initiale comme $h(t = 0) = 0$ donne la relation entre la position du front d'imbibition h et le temps t :

$$h(t) = \sqrt{\frac{\gamma R cos(\theta)}{2\mu} \cdot t} \tag{1.14}$$

L'Eq.1.14 est la forme classique du modèle de Washburn quand la gravité peut être négligée [WASHBURN, 1921].

En prenant en compte la gravité, on introduit un gradient de pression qui tend à freiner l'écoulement :

$$\nabla P - \rho g = \frac{\mu}{k} \cdot V \tag{1.15}$$

La solution de cette équation s'écrit [DELKER et collab., 1996] :

$$\frac{t}{\tau} = -\frac{h}{H_{eq}} - ln(1 - \frac{h}{H_{eq}}) \tag{1.16}$$

avec le temps caractéristique $\tau = H_{eq}\mu\varepsilon/\rho g k$ et la hauteur finale à l'équilibre $H_{eq} = h(t = \infty) = \dfrac{2\gamma cos(\theta)}{\rho g R}$.

La Fig.1.5 présente la dynamique d'imbibition capillaire dans un tube de rayon 50 μm, avec la tension superficielle $\gamma = 0,072$ N/m et la viscosité $\mu = 10^{-3}$ P$a.s$ de l'eau, selon l'Eq.1.16 en supposant un mouillage parfait ($\theta = 0$). Nous distinguons deux régimes (voir Fig.1.5) : dans le premier régime, lorsque la gravité est négligeable, la hauteur varie alors en fonction de la racine carrée du temps; dans un second temps, la gravité intervient, la montée du liquide ralentit et la hauteur s'équilibre finalement à la hauteur finale de 0,3 m. Nous pouvons également voir que typiquement en 0,1 s l'eau peut pénétrer sur 1 cm de hauteur, et atteint sa hauteur d'équilibre en environ 100 s.

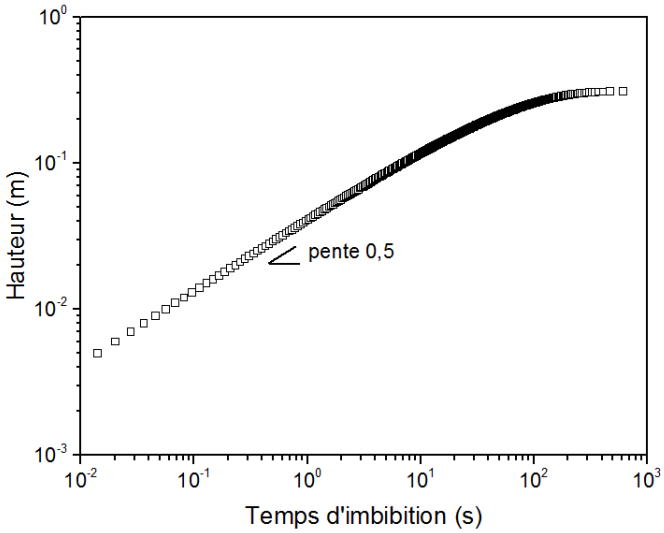


FIGURE 1.5 – Prédiction de l'imbibition d'eau dans un tube cylindrique de rayon 50 μm selon le modèle de Washburn en prenant la gravité en compte (voir Eq.1.16), avec $\theta = 0$.

1.1.1.4 Imbibition capillaire dans un milieu poreux

Considérons maintenant l'imbibition capillaire dans un milieu poreux quelconque. La force motrice est ici encore associée à une dépression capillaire résultant du mouillage du liquide sur les parois solides. Cependant il est plus délicat de définir le saut de pression car les pores peuvent être de tailles et de formes diverses. On peut simplement considérer que ce saut de pression est de la forme $\gamma cos(\theta)/\alpha r$, où r est une taille typique de pores de ce milieu et α un coefficient qui dépend de la distribution de tailles et de formes des pores. En utilisant la loi de Darcy on peut alors décrire l'imbibition du système, ce qui nous donne alors l'équation 1.16 avec H_{eq} défini par $\gamma cos(\theta)/\alpha r \rho g$.

Si les effets capillaires sont dominants lors de l'imbibition d'un milieu poreux, ils permettent en général de rééquilibrer le remplissage, autrement dit le front d'imbibition (composé d'interfaces liquide-air) qui progresse dans le milieu est à peu près plane et il sépare le milieu en une zone saturée en liquide et une zone vide. Un exemple de l'imbibition capillaire d'un matériau poreux réel est présenté sur la fig.1.6 avec un empilement

d'amidon, où l'on peut constater que la croissance de la zone de pénétration est en racine carrée du temps. DANG-VU et HUPKA [2005] ont examiné quantitativement la validité de la loi de Washburn avec différents liquides dans un empilement de billes de verre et ont constaté un bon accord (voir Fig.1.7).

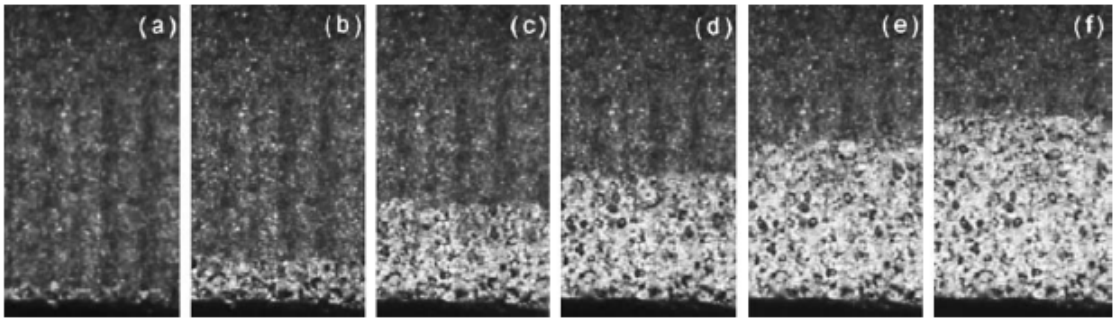


FIGURE 1.6 – Imbibition de décane dans un empilement d'amidon à différents instants : (a) 1 s ; (b) 10 s ; (c) 50 s ; (d) 120 s ; (e) 270 s ; (b) 400 s. Figure extraite de [KALOGIANNI et collab., 2004]

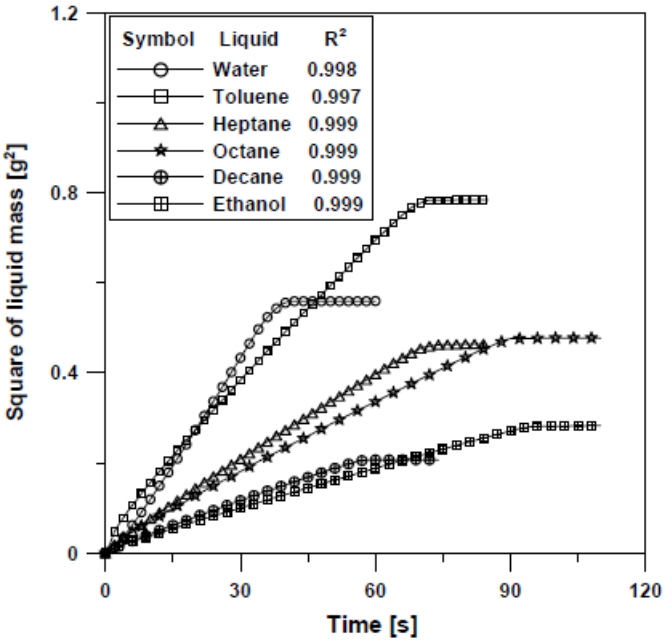


FIGURE 1.7 – Évolution de la masse imbibée au carré pour différents liquides en fonction du temps dans un empilement de billes de verre ($\phi : 60 - 110\ \mu m$) [DANG-VU et HUPKA, 2005].

Compte tenu de ces analyses et observations, le test d'imbibition combiné avec l'interprétation via le modèle de Washburn, est une méthode pratique couramment utilisée pour la caractérisation d'un milieu poreux, par exemple pour la détermination de l'angle de contact [KIRDPONPATTARA et collab., 2013; SIEBOLD et collab., 2000; SUBRAHMANYAM et collab., 1996] , ou de taille de pores [KALOGIANNI et collab., 2004; VAN OSS et collab.,

1992]. Selon les cas on mesure directement la distance de pénétration [BRUIL et VAN AARTSEN, 1974; LAGO et ARAUJO, 2001; POPOVICH et collab., 1999; PRESTIDGE et TSATOUHAS, 2000] ou on suit la masse imbibée [LABAJOS-BRONCANO et collab., 1999; SIEBOLD et collab., 1997; WOLFROM et collab., 2002].

1.1.2 Séchage

1.1.2.1 Évaporation

Contrairement à l'imbibition qui peut être considérée comme l'invasion d'une phase mouillante (eau) dans un milieu non-saturé sous l'action de la force capillaire, le séchage peut être considéré comme le remplacement de la phase mouillante (eau) par la phase non-mouillante (air), entraîné par l'évaporation de molécules d'eau dans l'air.

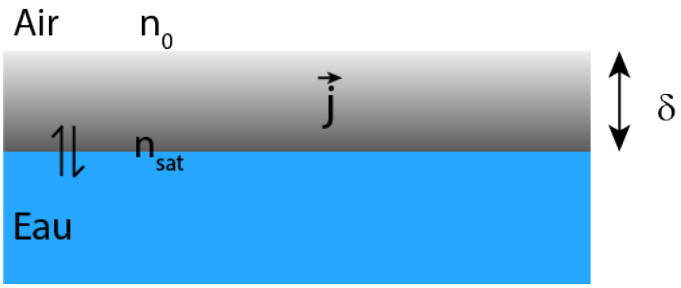


FIGURE 1.8 – Schéma du principe de l'évaporation d'eau à partir de l'interface eau-air. n_0 : densité de vapeur d'eau dans l'air ambiant; n_{sat} : densité de vapeur d'eau saturante; δ : épaisseur de la couche limite près de l'interface eau-air (voir la définition dans l'équation 1.19).

On définit la densité de vapeur d'eau saturante dans l'air n_{sat} qui dépend fortement des conditions extérieures (température, pression, etc.) À 25°C, $n_{sat} = 23,4 g/m^3$. Dans l'air ambiant, la densité de vapeur d'eau est n_0. L'humidité relative dans l'air est définie par :

$$\mathrm{HR}(\%) = \frac{n_0}{n_{sat}} \times 100\% \tag{1.17}$$

Dans le cas où HR = 100%, l'air est saturé de vapeur d'eau, il n'y a pas d'évaporation macroscopique (équilibre thermodynamique atteint). Lorsque HR < 100%, $n_0 < n_{sat}$, il n'y a plus d'équilibre et les molécules d'eau diffusent alors de la région où la densité de la vapeur d'eau est plus élevée vers la région où la densité est plus faible. Le flux massique de la vapeur d'eau $\vec{j}$ est décrit par la loi de Fick :

$$\vec{j} = \mathrm{D} \cdot \frac{\partial n}{\partial x} \tag{1.18}$$

où D est le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans l'air. À 25°C, $\mathrm{D} = 2,7\ m^2/s$.

Dans cette étude, nous nous intéressons au séchage convectif : l'air est soufflé à la même température que l'échantillon, ce qui renouvelle en continue l'air proche du liquide et impose donc à une distance faible de l'interface un HR faible (voir Fig.1.9). Dans

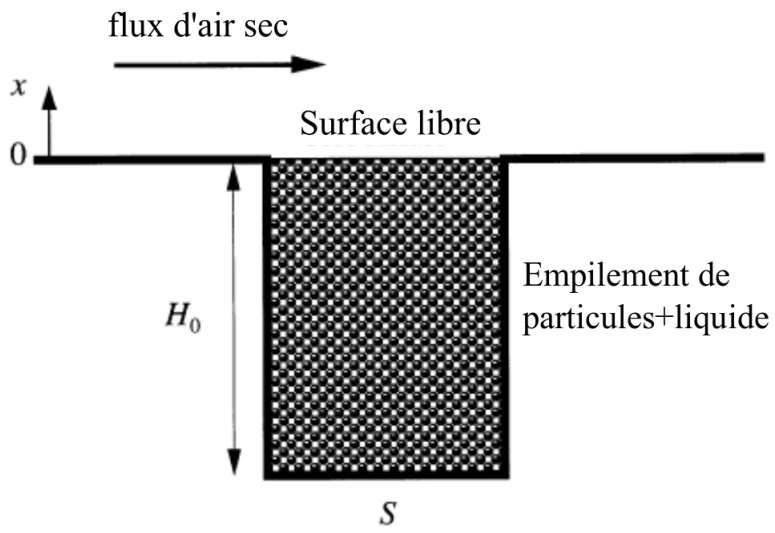


FIGURE 1.9 – Schéma du principe de séchage convectif d'un milieu poreux [COUSSOT, 2000].

une approche approximative [COUSSOT, 2000; SUZUKI et MAEDA, 1968], nous pouvons considérer une zone d'épaisseur δ (voir Fig.1.8) qui est la zone d'échange entre l'interface (l'air saturé près de la surface d'eau : n_{sat}) et le flux d'air imposé (n_0 est maintenu constant grâce à la ventilation). La vapeur diffuse à travers cette zone avec ces condition aux limites.

On définit la vitesse d'écoulement de d'eau liquide (V_e en m/s) pour approvisionner la surface libre (la surface du milieu en contact direct avec l'air ambiant) en eau. A partir de la loi de Fick, en régime permanent on peut établir la relation entre la variation de la masse du milieu et le flux massique de la vapeur d'eau :

$$-\frac{dm}{dt} = \rho_0 V_e S_0 = D\frac{n_{sat} - n_0}{\delta} S_0 \tag{1.19}$$

où ρ_0 est la densité de l'eau, S_0 la surface libre de l'échantillon, m la masse d'eau dans l'échantillon. Le débit associé à l'évaporation d'eau est alors $S_0 V_e$ dans le cas où la surface libre est entièrement occupée par de l'eau liquide.

En général, pour un milieu poreux, si la surface libre est entièrement occupée par un film d'eau exposée à la convection du flux d'air, le taux de séchage peut être obtenu à l'aide de l'équation 1.19. Si la surface libre n'est pas uniformément mouillée, l'eau s'évapore seulement d'une fraction de surface $\phi = S_w/S_{tot}$ (où S_w surface mouillée, S_{tot} surface totale exposée au flux d'air), mais cet effet est concerné par une vitesse d'évaporation plus grande, car les films ou gouttes de liquide ont plus d'air libre autour eux [LEHMANN et OR, 2013; SHAHRAEENI et collab., 2012]. Le taux d'évaporation reste ainsi généralement du même ordre de grandeur (pour $\phi \geq 0.1$) [COUSSOT, 2000; SUZUKI et MAEDA, 1968].

1.1.2.2 Séchage dans un milieu poreux granulaire

Pour mieux comprendre le phénomène de séchage, on peut commencer par regarder le séchage dans un milieu poreux modèle constitué d'un empilement de billes de verre. En étudiant le taux de séchage global (V_d, la vitesse de diminution de teneur en liquide

dans le milieu) au cours du temps, nous pouvons en général distinguer deux régimes principaux et un régime de transition entre les deux (voir Fig.1.10) [COUSSOT, 2000; FAURE et COUSSOT, 2010; PLOURDE et PRAT, 2003].

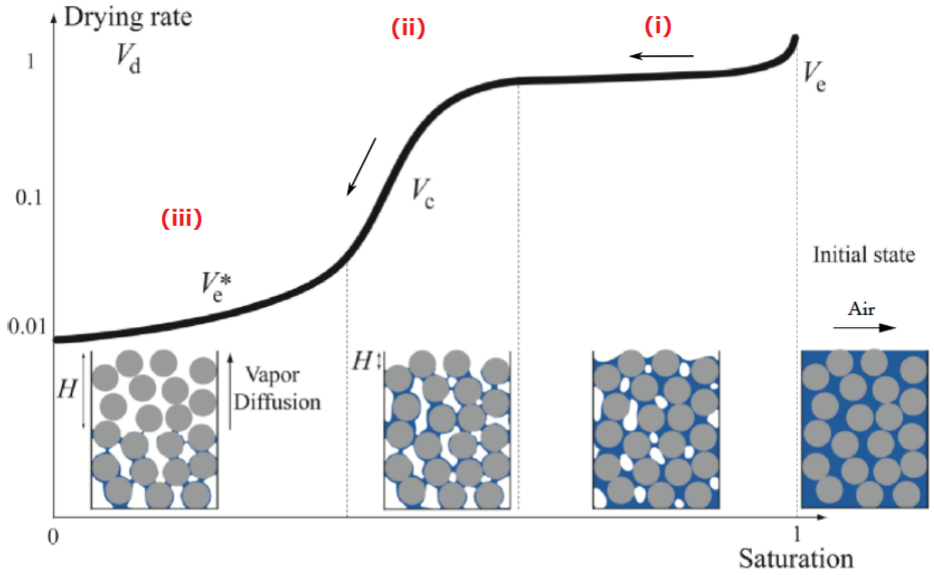


FIGURE 1.10 – Schéma montrant l'évolution du taux de séchage et l'évolution de la distribution d'eau dans un milieu poreux modèle. V_d taux de séchage global, V_c vitesse de remontée capillaire, V_e vitesse d'évaporation, V_e^* nouvelle vitesse d'évaporation dans le régime à front descendant. Adaptation de THIERY [2016] d'après COUSSOT [2000].

i : Régime évaporatif, ou régime à taux de séchage constant

Au début du séchage, nous observons d'abord une légère diminution du taux de séchage puis très vite le taux de séchage devient constant. La phase initiale où le taux de séchage décroît légèrement est la phase d'induction, pendant laquelle les transferts de chaleur et de masse s'établissent, de même que la couche limite d'épaisseur δ. Puis après cette courte période d'induction, un taux de séchage constant est observé, souvent pendant une longue période, durant laquelle la saturation (φ, définie comme le rapport entre le volume de liquide et le volume des pores $V_{liquide}/V_{pores}$) diminue largement (des empilements granulaires remplis de liquide pur cette période peut s'étendre jusqu'à une saturation de 10%). Pour expliquer ce phénomène on est obligé de considérer que la distribution du liquide à la surface libre du milieu poreux ne change pas fondamentalement, ou du moins qu'elle continue de bien humidifier la surface libre, même si les films ou gouttes de liquides peuvent être de plus en plus dispersés, alors que la saturation dans le milieu diminue considérablement.

Comment ce phénomène se produit-il ? Du fait de l'extraction d'eau près de la surface libre, les premiers ménisques eau-air se forment et tendent à pénétrer plus profondément dans le milieu. La Fig.1.11 est un schéma de principe des équilibrages capillaires. On considère l'évaporation d'un liquide dans un réseau où des pores de tailles différentes sont interconnectées par des canaux de taille unique. Le milieu est initialement rem-

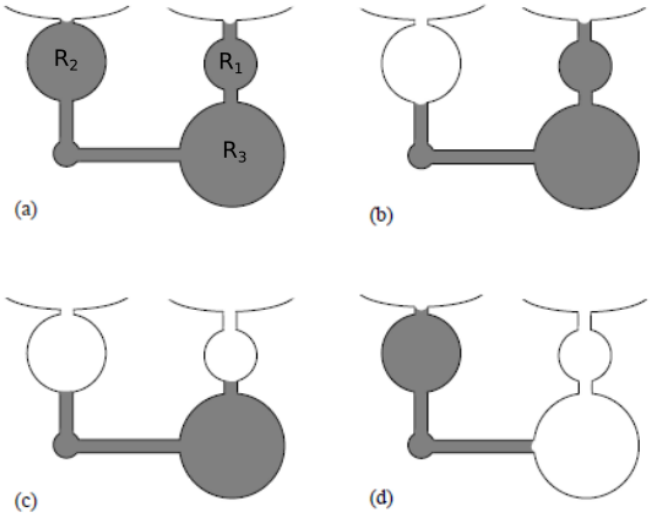


FIGURE 1.11 – Schéma du principe des rééquilibrages capillaires [COUSSOT, 2000]. L'ordre de la taille des trois pores : $R_1 < R_2 < R_3$. Le milieu est initialement rempli de liquide **(a)** puis l'invasion de l'air commence dans le pore le plus grand (R_2) dans la première couche près de la surface libre **(b)**. Puis l'évaporation continue dans le petit pores (R_1) dans la première couche **(c).** Un effet particulier a lieu lorsque l'interface eau-air rencontre le pore (R_3) de la deuxième couche qui est plus grand que le pore R_2 : le pore R_3 se vide brusquement alors que le pore R_2 de la première couche se remplit d'eau de nouveau.

pli d'eau liquide (Fig.1.11.a) puis l'invasion d'air a lieu dans les grands pores de la première couche près de la surface libre (Fig.1.11.b). Comme le remplacement d'une phase mouillante par une phase non-mouillante demande plus d'énergie de surface, pour un volume donné, l'invasion de l'air dans les grands pores est plus favorable que dans les petits pores (ratio volume sur surface moins important que pour des pores plus petits). Le séchage continue et ensuite, les pores moins grands dans la première couche près de la surface libre se vident (Fig.1.11.c). Finalement, lorsque l'évaporation continue et le front de l'air rencontre des ménisques plus grands dans la deuxième couche, l'air envahit brusquement ces grands pores et ainsi remplit de nouveau les grands pores d'eau dans la première couche (Fig.1.11.d). Ce mécanisme élémentaire va se reproduire une multitude de fois dans le milieu poreux, et permettre finalement un équilibrage capillaire à chaque instant à travers tout le milieu poreux, et une désaturation homogène du milieu (uniquement tant que la gravité est négligeable). Ainsi de l'eau liquide est "aspirée" vers le haut qui tend à maintenir la surface libre humide.

Ce mécanisme est mis en évidence par la Fig.1.12. Peu importe la structure de l'empilement, pendant le régime au taux de séchage constant, la désaturation a toujours lieu dans la couche avec des pores plus grands, qu'elle soit située dans la partie supérieure (Fig.1.12.a) ou dans la partie inférieure (Fig.1.12.b). La couche avec des pores plus petits commence à se vider seulement lorsqu'une saturation critique ϕ_c est atteinte.

A noter que cette période se prolonge tant que la vitesse d'évaporation à la surface libre V_e est inférieure à la vitesse de rééquilibrage capillaire à travers le milieu V_c ($V_e \ll$

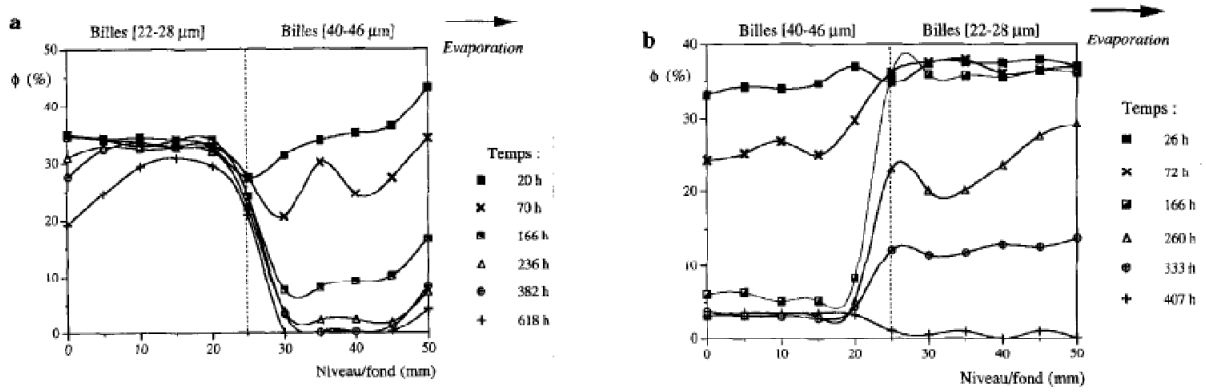


FIGURE 1.12 – Profils de teneur en eau par gamme densimétrie durant le séchage dans un empilement de billes de verre : **(a)** partie inférieure formée de billes de 40 à 46 μm, partie supérieure formée de billes de 22 à 28 μm ; **(b)** structure inversée de (a) [COUSSOT et collab., 1999].

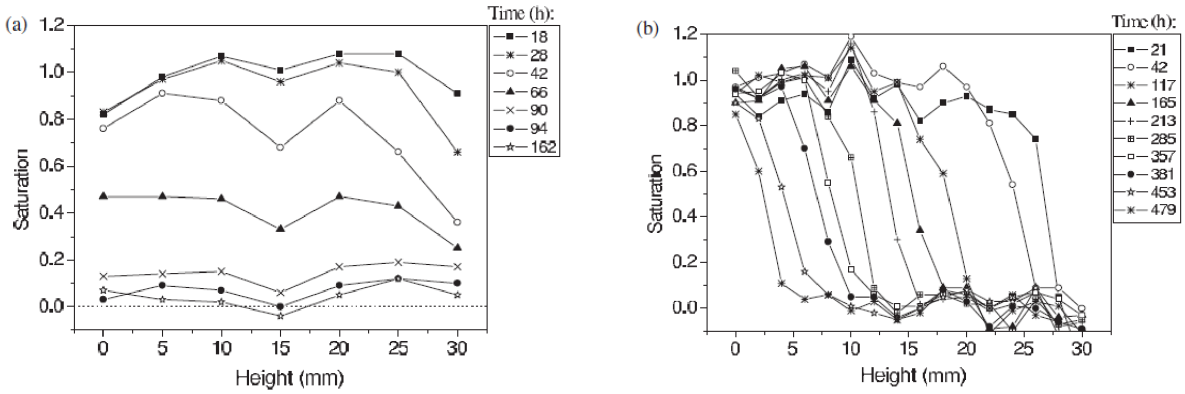


FIGURE 1.13 – Profils de saturation obtenus par gamma densimétrie dans des empilements de verre (a) billes hydrophiles et (b) billes hydrophobes pendant le séchage [SHAHIDZADEH-BONN et collab., 2007]. La surface libre où s'effectue l'évaporation d'eau se situe du côté droite des figures.

V_c). Dans cette situation, l'équation 1.19 est alors valide avec une épaisseur constante de la couche limite de δ. La Fig.1.13.a. montre les profils de saturation dans un empilement de verre hydrophile. Nous pouvons observer une diminution de la teneur en eau homogène à travers tout l'échantillon, qui confirme alors la continuité de la phase liquide dans ce régime. Selon les propriétés du milieu, le régime à taux de séchage constant peut durer longtemps jusqu'à une saturation très faible en eau ($\backsim$ 10%) sans casser la continuité du réseau d'eau liquide [SHAHIDZADEH-BONN et collab., 2007]. Au contraire, nous pouvons également constater que pour un empilement de verre hydrophobe lorsque l'angle de contact est élevé (Fig.1.13.b), la pression capillaire faible voire nulle ne permet pas la remontée capillaire et il n'y a donc pas de rééquilibrages capillaires entraînant la redistribution de teneur en eau, une zone sèche est formée au-dessous de la surface libre et pénètre dans la profondeur du milieu.

ii : Régime capillaire, ou régime de transition

Lorsque la vitesse caractéristique de rééquilibrage capillaire V_c n'est plus suffisante pour maintenir la surface libre mouillée, autrement dit lorsque $V_e > V_c$, le milieu peut avoir tendance à s'assécher près de la surface libre, là où l'eau est extraite en premier. Ceci conduit à éloigner la première interface eau-liquide de la surface libre de l'échantillon, ce qui augmente la distance de diffusion de la vapeur, et réduit donc la vitesse d'évaporation. Nous pouvons estimer la vitesse de rééquilibrage capillaire V_c à l'aide de la loi de Darcy présentée précédemment (eq.1.6). Pour le séchage d'un milieu poreux durant lequel un écoulement en insaturé s'effectue, la perméabilité k est en réalité un produit de la perméabilité intrinsèque du milieu k_{int} et un facteur $G(\phi)$ qui dépend de la saturation ϕ.

Nous avons alors :

$$V_d = V_c = -\frac{k_{int}G(\phi)}{\mu} \cdot \frac{P_c}{H_0} \tag{1.20}$$

où P_c est la pression capillaire. De cette relation nous déduisons que le taux de séchage diminue avec la saturation du milieu.

Pour un milieu poreux granulaire, la perméabilité k_{int} est donnée par la taille de pores r et la porosité ε :

$$k_{int} = F(\varepsilon)r^2 \tag{1.21}$$

où la valeur de $F(\varepsilon)$ peut être calculé par la formule de Kozeny-Carman [CARMAN, 1956] :

$$F(\varepsilon) \simeq \frac{\varepsilon^3}{45(1-\varepsilon)^2} \tag{1.22}$$

Le facteur $G(\phi)$ peut aussi être estimé par une formule empirique si on connait ϕ_c, la valeur critique à partir de laquelle le réseau du film liquide se déconnecte [CHATZIS et DULLIEN, 1977] :

$$G(\phi) = \frac{(\phi-\phi_c)^3}{(1-\phi_c)^3} \tag{1.23}$$

Nous pouvons voir que, lorsque ϕ diminue et tend vers ϕ_c, $G(\phi)$ devient très petit et on observe alors une diminution rapide du taux de séchage autour de ϕ_c.

iii : Régime à front descendant

Après le régime de transition, la saturation de la phase liquide est trop faible pour permettre le rééquilibrage capillaire. Le second régime principal commence alors vers la fin du séchage où le front d'évaporation (ou appelé le front sec) commence à pénétrer dans le milieu. Dans cette situation, la vitesse de remontée capillaire devient plus faible que la nouvelle vitesse d'évaporation dans l'intérieur du milieu $V_e^* \gg V_c$. L'eau liquide n'est plus mobile et le seul moyen de sécher le milieu est l'évaporation à partir du front sec et la diffusion à travers le milieu. Le taux de séchage est ainsi donné par la vitesse d'évaporation V_e^*, qui diminue avec la distance H entre le front sec et la surface libre :

$$V_d = V_e^* = -D^* \frac{n_{sat} - n_0}{\delta^* + H} \cdot \frac{1}{\rho_0} \tag{1.24}$$

où $D^* = \varepsilon D_0/\tau$ est le coefficient de diffusion de la vapeur dans le milieu poreux partiellement saturé, ε étant la porosité du milieu, τ la tortuosité du milieu poreux (unité arbitraire ≥ 1), $\delta^* = \frac{D^*}{D_0} \cdot \delta$.

Dans le cas où $\delta^* \ll H$, nous pouvons considérer que le taux de séchage est proportionnel à l'inverse de H.

Un schéma récapitulatif montrant la distribution de saturation d'eau pendant ces régimes de séchage est présentée sur la Fig.1.14. Dans les travaux de THIERY et collab. [2017], les deux régimes principaux dans un milieu poreux homogène sont observés de l'échelle macroscopique à l'échelle nanoscopique (voir Fig.1.15) : dans le premier régime, on constate une désaturation parfaitement homogène à travers le milieu jusqu'à une saturation très faible. Ensuite, le deuxième régime à taux de séchage décroissant commence, accompagné par le développement d'une région sèche.

1.1.2.3 Séchage dans les tubes capillaires

Nous venons de voir les trois régimes classiques du séchage dans un milieu poreux granulaire. Les pores dans le système sont interconnectés, dans lequel un réseau de film d'eau complexe peut se former. Compte tenu de la structure spécifique du bois qui est composée essentiellement de cellules allongées qui peuvent être considérés comme des conduits capillaires, il est donc intéressant de regarder comment la forme des pores modifie la dynamique de séchage dans les tubes capillaires.

Tube cylindrique On présente d'abord le séchage d'eau dans un tube cylindrique sur la Fig.1.16.a. Le séchage s'effectue à l'entrée du tube capillaire. À mesure que l'évaporation d'eau continue, l'interface eau-air descend dans le tube qui sépare le tube en deux zones : une zone saturée en eau et une zone qui ne contient que de l'air et de la vapeur d'eau. Lorsque l'interface se trouve loin de l'entrée du tube (surface libre), on peut négliger la forme du ménisque et simplement noter que l'interface se trouve à la hauteur Z_0. Le séchage dans ce cas est dominé par l'évaporation depuis l'interface d'eau à l'extérieur sur une distance de $L - Z_0 + \delta$, où L est la longueur du tube. D'après l'Eq.1.19, la cinétique de séchage s'écrit ainsi :

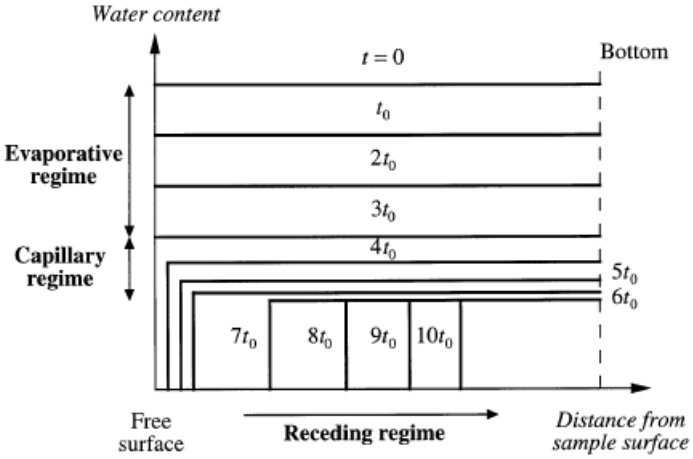


FIGURE 1.14 – Représentation schématique de la distribution de teneur en eau pendant les trois régimes de séchage d'un milieu poreux modèle (empilement granulaire). Dans le premier régime (régime évaporatif), le profil de densité de liquide est linéaire et horizontal qui avance à une vitesse presque constante. Dans le second régime un léger recul du profil de densité est observé près de la surface libre, tandis que le profil avance à une vitesse réduite. Dans le dernier régime, seul le profil qui correspond à la densité zéro (zone sèche) pénètre dans la profondeur de l'échantillon [COUSSOT, 2000].

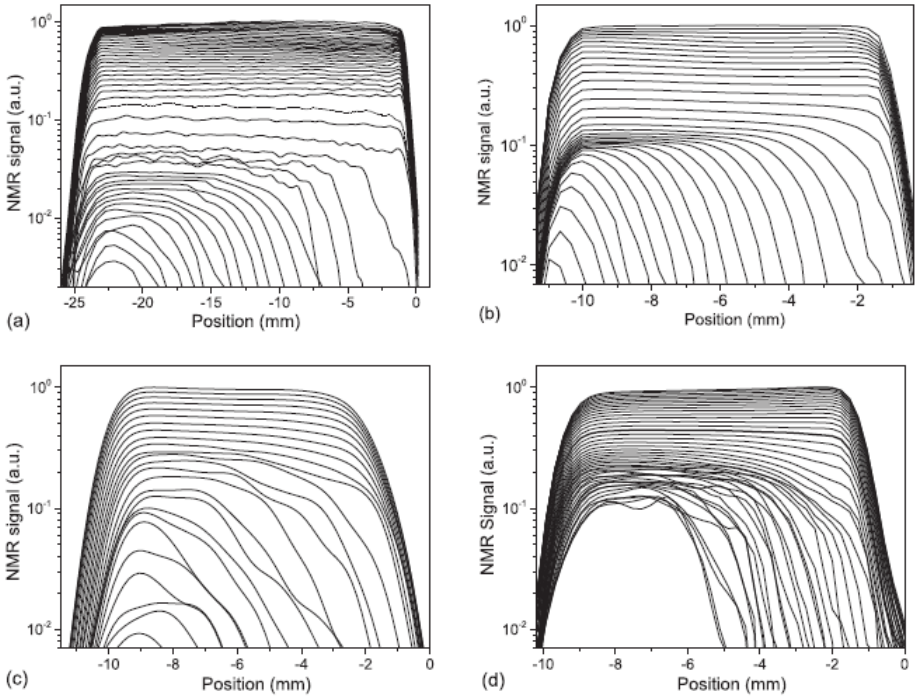


FIGURE 1.15 – Profils d'IRM montrant la distribution de saturation pendant le séchage d'un milieu poreux homogène (empilement de particules de gel). La surface libre est situé à $x = 0\ cm$. Intervalle du temps pour différentes tailles de particules : **(a)** 45 000 nm ($\triangle t$ d'abord 23, puis 44 min), **(b)** 1500 nm (33 min), **(c)** 1000 nm (36 min), **(d)** 300 nm (50 min). Figure extraite des travaux de THIERY et collab. [2017].

$$\rho V_e = -\frac{1}{S_0}\frac{dm}{dt} = D\frac{n_{sat} - n_0}{L - Z_0 + \delta} \tag{1.25}$$

Nous devons donc dès le début observer le taux de séchage qui diminue constamment avec le temps. La longueur de la zone saturée en eau diminue, zone dans laquelle il n'y a pas d'écoulement longitudinal.

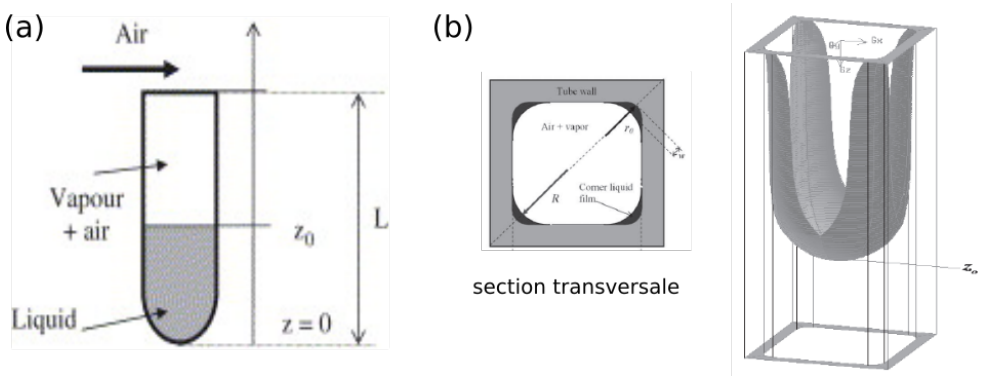


FIGURE 1.16 – **(a)** Schéma de l'évaporation dans un tube cylindrique [CAMASSEL et collab., 2005]. **(b)** Schéma de la forme de l'interface eau-air pendant le séchage dans un tube à section carrée [CHAUVET et collab., 2009].

Tube à section carrée La dynamique de séchage dans un tube à section carrée est complètement différente de celle dans un tube cylindrique, à cause de la répartition de l'eau le long de la paroi du tube (voir Fig.1.16.b).

CHAUVET et collab. [2009] ont observé trois périodes de séchage dans un tube à section carrée qui sont similaires aux trois régimes dans un milieu poreux granulaire. Comme illustré par la Fig.1.16.b, le séchage dans cette condition est caractérisé par l'invasion d'un ménisque principal en laissant des films d'eau dans les coins de la section carrée du tube. En effet, pendant le premier régime, les films d'eau sont accrochés à la surface libre par effet capillaire. L'évaporation d'eau ne s'effectue qu'à la surface libre car dans le tube l'air est saturé en vapeur d'eau sauf dans la zone très proche de l'entrée du tube [KEITA et collab., 2016] (voir Fig.1.17.a). Tant que les films d'eau sont accrochés à la surface libre, l'écoulement longitudinal est assuré par la dépression capillaire. On observe ainsi un régime à taux de séchage presque constant. Puis le séchage continue, les films d'eau deviennent assez fins pour que la dissipation visqueuse soit plus importante que la force capillaire. On entre alors dans le deuxième régime pendant lequel on observe une diminution de la vitesse de séchage et le détachement des films de la surface libre (voir Fig.1.17.b). Finalement un régime de diffusion similaire à celui existant dans un tube cylindrique apparait vers la fin du séchage.

En comparant la dynamique de séchage dans les deux types de tube, on peut en conclure que la géométrie du tube ainsi que la forme de l'interface eau-air jouent un rôle important. Dans un milieu poreux granulaire où la connectivité des pores est plus complexe, les

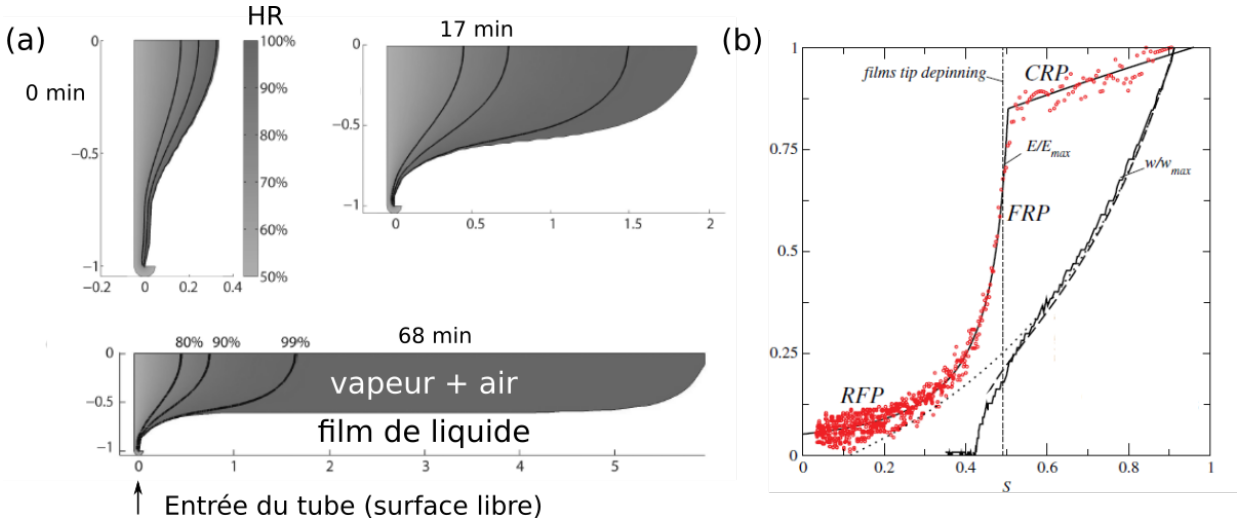


FIGURE 1.17 – **(a)** Simulation par éléments finis du champ d'humidité relative dans un tube de section polygonale pendant le premier régime à taux de séchage constant [KEITA et collab., 2016]. L'axe x représente la hauteur du tube en mm et l'axe y représente la position radiale par rapport au centre du tube. Les lignes noires représentent les iso-surfaces pour la densité de vapeur. **(b)** Courbe de taux de séchage normalisé en fonction de la saturation du tube [CHAUVET et collab., 2009].

films d'eau se forment dans les pores ou aux points de contact entre grains. De ce fait, on peut voir les similarités entre un milieu poreux 3D et un tube capillaire à section polygonale, même si ce dernier a une géométrie simple.

1.2 Structure et propriétés physiques du bois

Issus de la nature, les arbres présentent une grande variabilité. Nous sommes entourés par des arbres de tailles diverses : de petits arbres de quelques mètres jusqu'au conifère le plus grand du monde (*Sequoia sempervirens*) qui peut mesurer jusqu'à 115 mètres de haut. Les cellules du bois ont deux fonctions principales : la conduction de la sève et le soutien mécanique. Le bois est un matériau multi-échelle, dont les propriétés mécaniques varient fortement d'une essence à l'autre, ce qui permet différentes applications. Selon l'échelle d'observation, le bois présente une structure complètement différente (voir Fig.1.18).

L'étude du bois est un point de rencontre entre les biologistes, les chimistes et les physiciens. La compréhension de la croissance de l'arbre et l'étude des fonctionnements du bois sont non seulement utiles pour mieux apprécier la micro-structure de ce matériau, mais aussi essentielles pour étudier ses comportements hydriques. De ce fait, dans cette section nous allons d'abord présenter la structure du bois à différentes échelles, puis nous verrons la relation eau-bois et enfin les concepts physiques utilisés pour les transferts d'eau dans le bois.

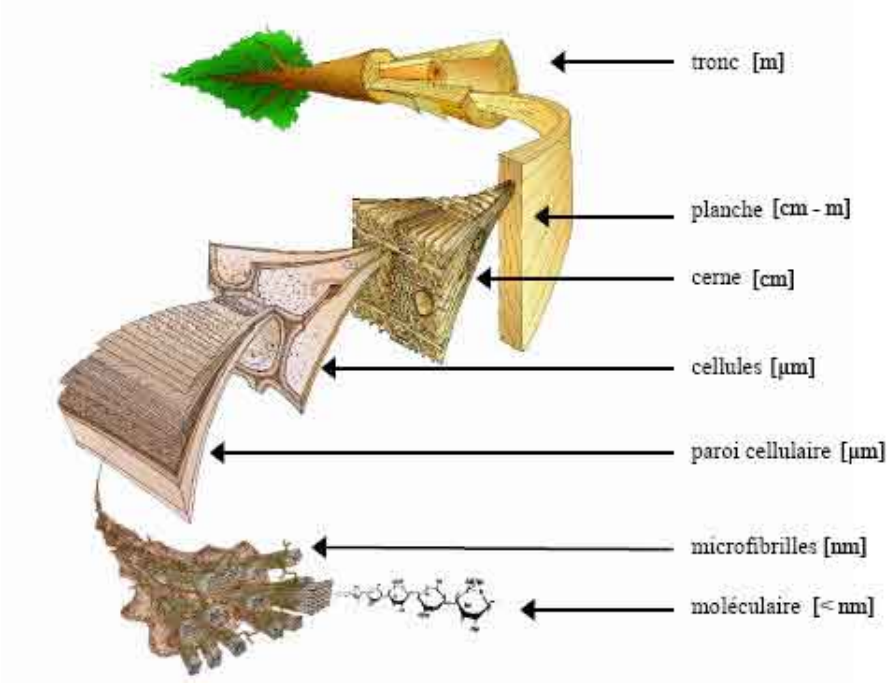


FIGURE 1.18 – Différentes échelles d'observations et structures correspondantes du matériau du bois, d'après HARRINGTON [1999].

1.2.1 Formation du bois et structure macroscopique

1.2.1.1 Croissance des arbres

Pour commencer nous pouvons d'abord imaginer une situation et nous poser une question : un enfant a fait une marque (disons son prénom) sur l'écorce d'un jeune arbre ; quelques années après, alors que l'enfant revient voir cet arbre, où va-t-il trouver sa marque sur l'écorce ? Se trouve-t-elle plus haut du fait de la croissance de l'arbre ? Je pense que beaucoup de gens vont répondre oui. Mais la réponse est non : la marque se trouve toujours à la même hauteur.

Contrairement à l'intuition, pour grandir l'arbre forme chaque année sous l'écorce une nouvelle couche cylindrique de cellules de bois et la dépose sur les couches précédemment formées. L'arbre croît en longueur et en largeur (voir Fig.1.19)

La croissance en longueur s'effectue uniquement au niveau des extrémités des branches ou des racines, grâce à des cellules qui s'appellent méristèmes primaires. La croissance en longueur est le résultat de la formation de nouvelles couches dans la direction longitudinale et de l'élongation de ces nouvelles cellules.

La croissance en largeur quant à elle, est un aspect important pour comprendre la structure dans le plan transverse. Le cambium (voir Fig.1.19) est une couche de cellules méristèmes secondaires. Il forme les cellules du bois vers l'intérieur de l'arbre, ou les cellules de liber (écorce interne), vers l'extérieur, entre le cambium et l'écorce. Ainsi, les cellules se multiplient chaque année pour assurer la croissance en diamètre.

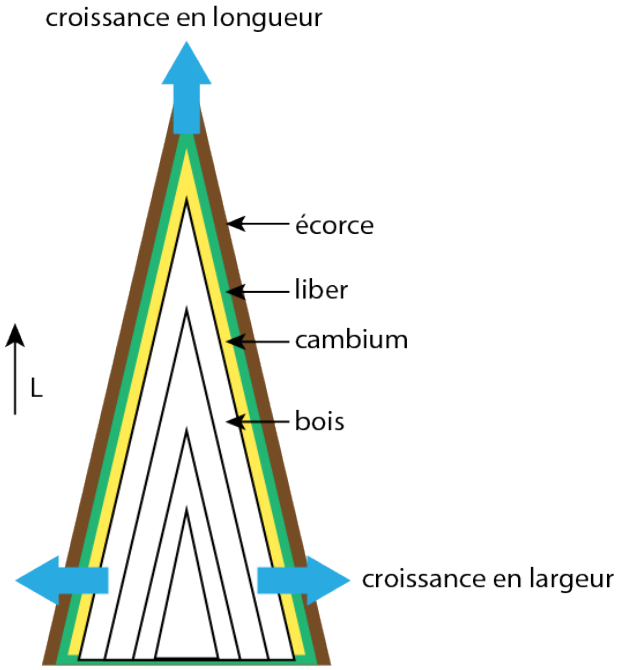


FIGURE 1.19 – Illustration de la croissance d'un arbre.

Le bois de l'arbre se compose de deux parties : l'aubier et le duramen.

L'aubier est une zone de bois récemment formée, qui contient encore des cellules vivantes. La sève brute circule dans les couches les plus externes de l'aubier.

Le duramen est la zone de bois éloignée de l'écorce. Il constitue le bois le plus ancien et ne contient que des cellules mortes. Le duramen peut être plus coloré et se distingue ainsi facilement de l'aubier. Il existe également des cas où l'aubier et le duramen ne peuvent pas être distingués à l'œil nu.

Comme l'aubier contient des réserves d'amidon et a une humidité plus élevée, il est plus vulnérable vis-à-vis des insectes et des champignons. Il est ainsi considéré que le duramen est plus durable que l'aubier. Par ailleurs, le duramen est souvent moins perméable que l'aubier, soit à cause de l'aspiration des ponctuations aréolées chez les résineux (voir Section 1.2.2.1), soit en raison des conduits bouchés par des gommes ou par des thylles chez les feuillus.

La structure générale d'un tronc d'arbre est présentée sur la Fig.1.20 , où on peut distinguer de l'extérieur à l'intérieur : l'écorce, le liber (ou phloème secondaire), le cambium, l'aubier et le duramen.

La sève brute est l'eau aspirée dans le sol par la racine puis pompée jusqu'aux feuilles. Pour la croissance et le maintien de vie, un arbre a besoin de beaucoup d'eau et de nutriments. Dans un arbre, nous pouvons distinguer deux types de sève : la sève brute et la sève élaborée. Lé tissu du bois où se circule la sève brute s'appelle le xylème. L'arbre ne consomme en réalité que 1% de l'eau qu'il absorbe par les racines [HOLBROOK et collab., 2002]. Le reste finit simplement par s'évaporer de la surface des feuilles dans l'air.

Quant à la sève élaborée, elle contient des sucres produits par la photosynthèse dans

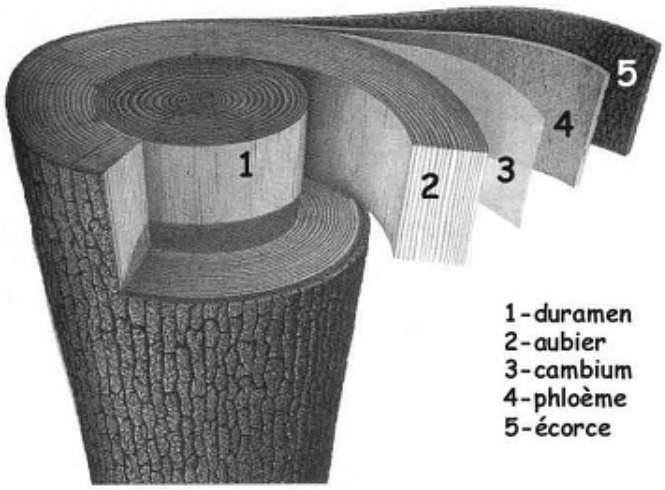


FIGURE 1.20 – Structure générale d'un tronc d'arbre (extrait de "la Nature" cité par BARY-LENGER et NEBOUT [1993]).

les feuilles et circule dans le tissu conducteur appelé phloème. Elle achemine des sucres dans le sens descendant vers les cellules de l'arbre qui ont besoin de nutriments pour se nourrir et grandir.

1.2.1.2 Cernes annuels dans le bois

Dans les régions tempérées, le cambium ne forme de nouvelles couches cylindriques de cellules que pendant la saison de végétation. La croissance de l'arbre s'arrête au début de l'automne.

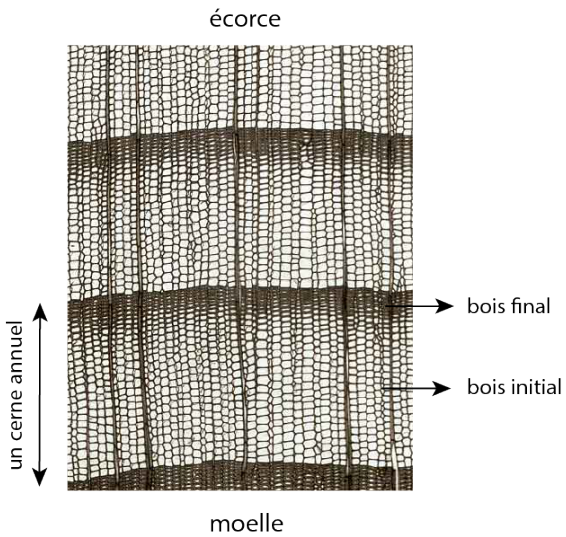


FIGURE 1.21 – Structure microscopique du bois de Douglas (résineux). Plan RT. Source : [SCHOCH et collab., 2004].

Le bois formé au début de la saison de végétation (au printemps) s'appelle bois initial. Comme l'arbre reprend ses activités au printemps, sa demande en sève est importante. Par conséquent, le cambium forme plutôt de grosses cellules ayant une grande cavité (le lumen) et des parois minces pour assurer une conduction efficace.

En revanche, à la fin de la saison de végétation (en été) les cellules formées sont plus petites avec des parois plus épaisses. On les définit comme bois final. Comme le bois final est moins poreux et contient plus de matière, à l'œil nu on peut voir qu'il a une couleur plus foncée que le bois initial.

L'ensemble du bois initial et du bois final formés au cours d'une même année forme ce qu'on appelle un cerne annuel.

La Fig.1.21 présente la structure microscopique d'un résineux - le douglas. Nous pouvons distinguer facilement le bois initial et le bois final, et nous observons également une diminution plutôt graduelle de la taille de cellules du bois initial au bois final. Lorsqu'on passe directement du bois final au bois initial, nous pouvons remarquer un changement abrupt de la taille de cellules, qui marque alors la limite de cerne.

1.2.1.3 Directions et plans de référence

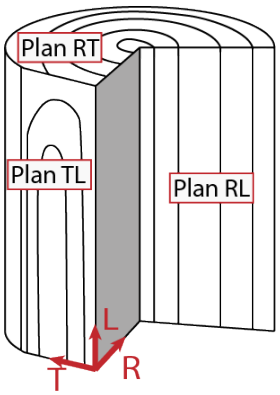


FIGURE 1.22 – Directions d'anisotropie du bois : radiale (R), tangentielle (T) et longitudinale (L), et plans de référence : plan transverse (RT), plan tangentiel (TL) et plan radial (RL).

Le mode de croissance de l'arbre que nous venons de présenter donne un matériau anisotrope : la structure et les propriétés physiques du bois varient selon la direction choisie. On peut définir trois directions de référence (voir Fig.1.22) :

— La direction longitudinale L est la direction qui correspond à l'axe des tiges (tronc ou branches). Il s'agit de la direction de plus grande dimension des trachéides pour les résineux ou des vaisseaux et des fibres pour les feuillus. La conduction de la sève s'effectue dans cette direction.

— La direction radiale R est la direction qui passe par le centre biologique de l'arbre et est perpendiculaire aux limites de cernes.

— La direction tangentielle T est la direction qui est tangentielle aux limites de cernes et perpendiculaire à la direction L et R.

Les trois directions de référence nous permettent de définir trois plans de référence : le plan RT (ou plan transverse), le plan TL (ou plan tangentiel) et le plan RL (ou plan radial).

Dans le plan transverse, nous pouvons distinguer l'aubier et le duramen, et observer le bois initial, le bois final ainsi que les cernes annuels. Des cellules allongées dans ce plan, appelées les rayons ligneux, assurent trois fonctions : conduction radiale de la sève brute, soutien de la tige et stockage de substances chimiques. Nous pouvons identifier le plan transversal à l'aide de la présence des rayons ligneux qui apparaissent comme des lignes. Dans le plan radial, les rayons ligneux apparaissent sous forme de bandes ou de plages radiales. Enfin dans le plan tangentiel, les limites de cernes présentent une forme de parabole, et les rayons ligneux sont visibles sous forme de chapelets de cellules superposées.

1.2.2 Structure microscopique du bois

À l'échelle microscopique, le bois est constitué de différentes cellules. Les cellules ont une forme tubulaire, avec une cavité au milieu qu'on appelle lumen. La phase solide du bois est constituée de parois cellulaires.

On peut distinguer deux groupes de bois. Les résineux ou les conifères, sont des gymnospermes, c'est-à-dire des plantes ayant des graines nues non incluses dans des fruits fermés. Au contraire, les feuillus font partie des angiospermes, qui fleurissent et portent des fruits. Nous allons voir dans cette section que la structure cellulaire des résineux et des feuillus est complètement différente. La connaissance de la différence de structure entre résineux et feuillus est indispensable pour étudier les transferts d'eau dans ce matériau d'origine naturelle. La structure des feuillus sera plus détaillée que celle des résineux dans cette section, car les essences étudiées (peuplier, charme, chêne et frêne) dans cette thèse sont toutes des feuillus.

1.2.2.1 Résineux

Les résineux sont des espèces très anciennes qui ont prospéré surtout pendant le jurassique et ont décliné depuis ; aujourd'hui il n'existe plus que 500 espèces. Les résineux sont des bois « simples » vis-à-vis de leur composition et de leur organisation.

Les deux fonctions majeures du bois, la conduction de la sève brute et le soutien mécanique, sont assurées par un seul type de cellule, les trachéides, qui représentent environ 90% du volume total d'un bois de résineux. Ensuite, il y a aussi des rayons ligneux, du parenchyme radial ou longitudinal dont le rôle principal est le stockage de réserve et des canaux résinifères. La Fig.1.23 présente les éléments structuraux principaux d'un bois de résineux.

Les trachéides longitudinales mesurent en moyenne 3 mm en longueur [TROUY, 2015]. Dans ces conditions on peut se demander comment elles peuvent assurer le passage de la sève brute dans des arbres de plusieurs mètres de haut ? En fait, les résineux développent de petites ouvertures (appelées ponctuations, voir Fig.1.23) sur des parois radiales à l'extrémité des trachéides, par où l'eau peut traverser d'une cellule à l'autre. Les ponctuations

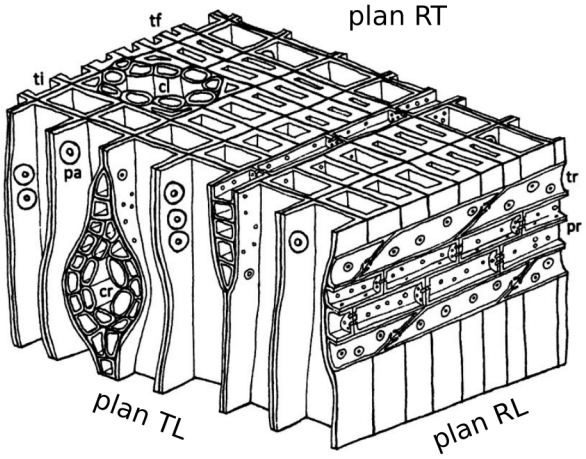


FIGURE 1.23 – Représentation schématique de la structure cellulaire d'un bois de résineux. ti : trachéide longitudinale du bois initial; tf : trachéide longitudinale du bois final; pa : ponctuation aréolée; cl : canal résinifère longitudinal; cr : canal résinifère radial; pr : parenchyme radial; tr : trachéide radiale. D'après TROUY [2015].

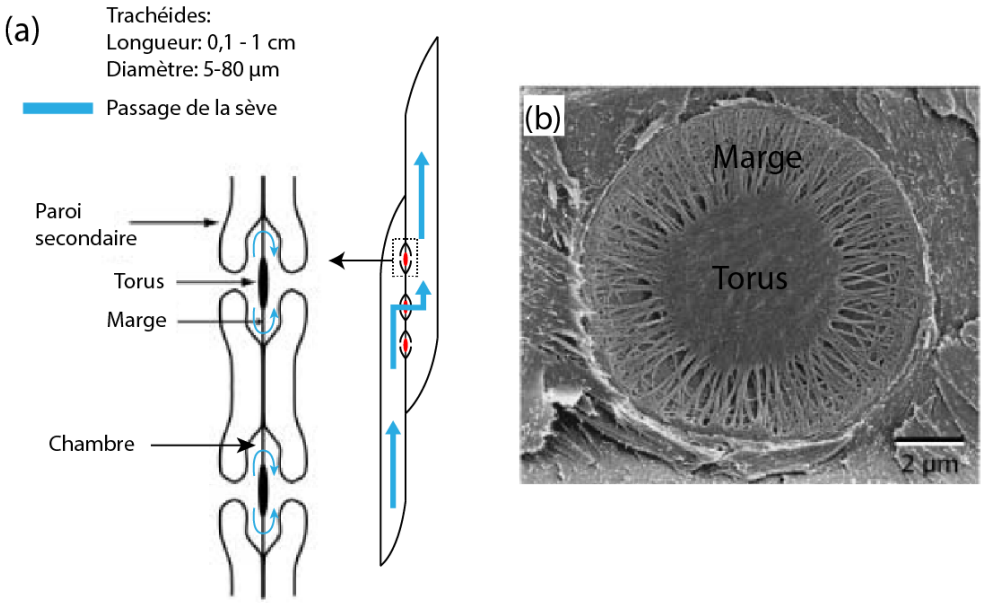


FIGURE 1.24 – (a)Représentation schématique d'une ponctuation aréolée située sur la paroi radiale d'un résineux. (b) Image en MEB montrant la structure typique d'une ponctuation d'un résineux, avec épaississement central (torus) et région extérieure très poreuse (marge). D'après CHOAT et collab. [2008].

dans les trachéides des résineux sont aréolées, c'est-à-dire qu'elles ont une forme d'auréole (ou d'aréole) sur une coupe radiale. La Fig.1.24 représente une ponctuation aréolée d'un résineux. Sur la paroi commune partagée par deux trachéides opposées, une partie de la paroi secondaire est décollée avec une petite ouverture au centre, créant ainsi un espace « libre » appelé chambre. Une membrane de ponctuation située au centre de la chambre est constituée d'un disque lenticulaire (torus) formé par l'épaississement de la paroi primaire et d'un réseau de fibrilles de cellulose (marge). La marge très poreuse et extensible permet le passage de la sève.

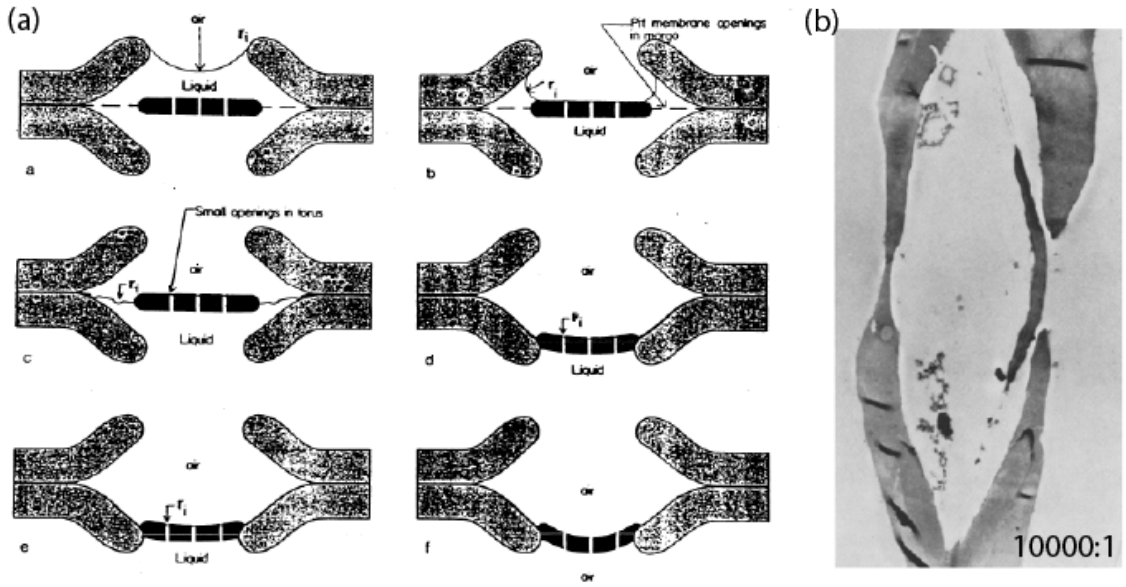


FIGURE 1.25 – **(a)** Représentation schématique montrant le mécanisme de l'aspiration d'une ponctuation aréolée lors du passage d'une interface eau-air [SIAU, 1984].**(b)** Image au microscope électronique montrant une ponctuation aspirée sur une coupe transversale [LIESE et BAUCH, 1967].

Un des grands avantages de cette structure de ponctuation est la mobilité de la membrane grâce à la marge. Comme l'eau dans l'arbre est « aspirée » au niveau des feuilles dont la hauteur peut atteindre plusieurs dizaines mètres, elle est toujours sous tension négative et se trouve ainsi dans un état métastable. L'apparition d'une bulle d'air (provoquée par la saison de sécheresse, ou une trop forte transpiration en été) interrompant la conduction de la sève dans les conduits peut être fatale pour un arbre. On appelle ce phénomène l'embolie. Les ponctuations auréolées permettent à l'arbre d'empêcher l'expansion de bulles d'air d'une trachéide embolisée à l'autre trachéide conductrice avoisinante.

Le mécanisme de l'aspiration d'une ponctuation aréolée est montré sur la Fig.1.25. Lorsque le front liquide-air avance et rencontre une ponctuation, la pression capillaire créée par les petits pores sur la marge de membrane est si élevée que, avec la propagation du front, la membrane se déforme et finalement le torus bloque l'ouverture de la ponctuation. On dit que la ponctuation est aspirée, comme une valve fermée. La Fig.1.25.b. montre une observation expérimentale de la fermeture du passage.

1.2.2.2 Feuillus

Contrairement aux résineux, les feuillus sont actuellement à leur apogée, ce qui signifie que le nombre de ces espèces n'a jamais été aussi important dans l'histoire [TROUY, 2015]. On les trouve dans le monde entier avec une très grande variété. Chez les feuillus, les deux fonctions du bois sont assurées séparément par deux types de cellules : les cellules les plus larges, appelées vaisseaux, sont spécialisées dans la conduction de la sève; tandis que les cellules plus étroites et courtes, aux parois plus épaisses, appelées fibres, fournissent le soutien mécanique aux arbres. L'apparition des vaisseaux peut être considérée comme le résultat de l'évolution des angiospermes pour rendre la conduction de la sève plus efficace [CARLQUIST, 2012].

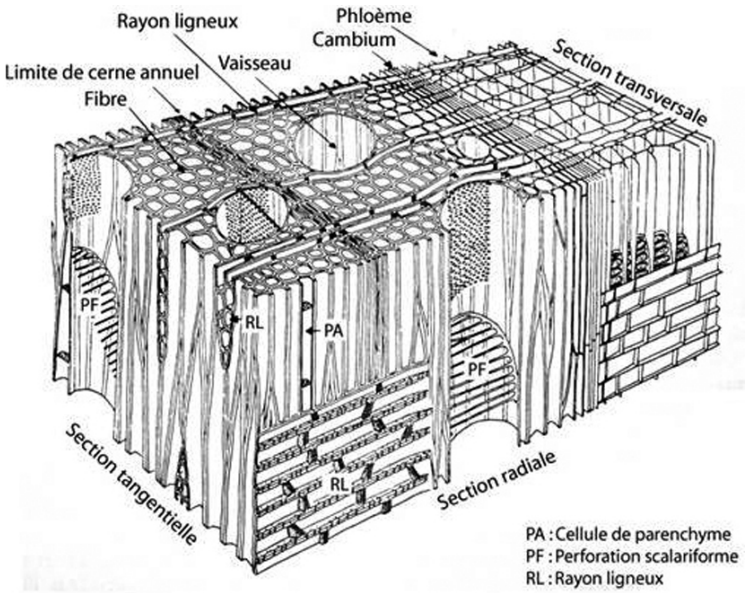


FIGURE 1.26 – Schéma de la structure du feuillu adapté de [SCHWEINGRUBER, 1978].

La Fig.1.26 présente la structure typique des feuillus. Un feuillu est constitué principalement de vaisseaux et de fibres. Typiquement, la fraction volumique des vaisseaux varie entre 20-60% tandis que les fibres peuvent occuper 20-70% du volume de bois, selon les espèces [SIAU, 1984]. Les rayons ligneux, ou parenchymes radiaux, occupent généralement quelques pourcents du volume total.

Selon la répartition des vaisseaux, nous pouvons classer les feuillus en trois catégories :

— les feuillus à pores diffus, ou feuillus homogènes, présentent une répartition plutôt homogène des vaisseaux à l'intérieur du cerne et peu de différences de taille des vaisseaux. Exemples : le charme, le peuplier, l'érable, le bouleau, etc.

— les feuillus à zone semi-poreuse présentent une diminution graduelle de la taille des vaisseaux du bois initial jusqu'au bois final. Exemples : le noyer, le merisier, le peuplier, etc.

— les feuillus à zone initiale poreuse, présentent dans le bois initial une distribution de vaisseaux plus intense que ceux dans le bois final. Exemples : le chêne, le frêne, l'orme, etc.

Nous pouvons remarquer que le peuplier apparaît dans la catégorie de feuillus à pores diffus et aussi dans celle de feuillus à zone semi-poreuse. En effet, la limite entre les deux groupes n'est pas stricte. Un bois comme le peuplier présente les caractéristiques de ces deux groupes ; on dit que le peuplier est un feuillu à tendance semi-poreuse. C'est toutefois un matériau d'étude intéressant dont la distribution des vaisseaux est assez homogène.

Vaisseaux

En général, la différenciation d'une cellule de bois peut être décomposée en plusieurs étapes : d'abord la croissance en diamètre et en longueur ; ensuite la formation de la paroi secondaire (cellulose et hémicelluloses) en même temps que la lignification de la paroi ; puis la mort de la cellule laissant la cavité (lumen) au centre de la cellule ; et enfin la fin de la maturation chimique de la paroi.

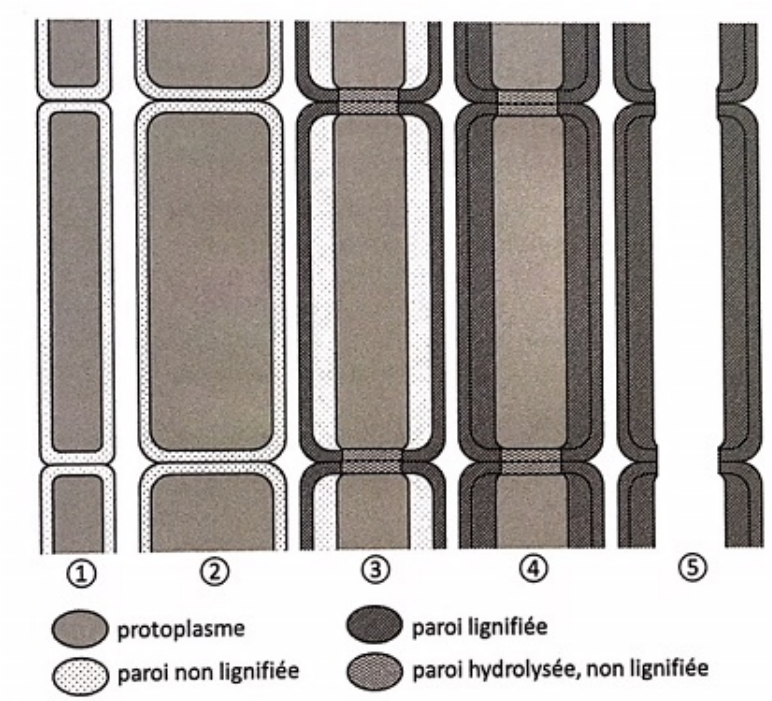


FIGURE 1.27 – Représentation schématique des différentes étapes de la différenciation d'un vaisseau : 1) Cellules fusiformes initiales. 2) Croissance des cellules principalement en diamètre. 3) et 4) Dépôt de la paroi secondaire et lignification de parois sauf des parois terminales. 5) Mort des cellules et disparitions des parois terminales pour constituer un seul vaisseau (extrait de [TROUY, 2015]).

Ces étapes peuvent décrire la formation des trachéides pour les résineux et des fibres pour les feuillus. Les vaisseaux ne sont pas formés à partir d'une seule cellule, mais sont en réalité constitués d'un empilement d'éléments de vaisseau. Les éléments de vaisseau

sont formés de façon à peu près similaire à celle des trachéides et des fibres, mais pendant la croissance, ils subissent un changement plus important en diamètre, et lors de la dernière étape de la différenciation, les parois terminales entre deux éléments de vaisseaux sont résorbées pour laisser passer la sève brute. La Fig.1.27 représente les étapes de la différenciation d'un vaisseau.

Ainsi, nous pouvons voir que si la longueur d'un élément de vaisseau est fixée, celle d'un vaisseau n'est pas limitée, car elle dépend du nombre d'éléments de vaisseau empilés. La longueur d'un élément de vaisseau est typiquement de l'ordre de quelques centaines de μm. Quant à un vaisseau entier, sa longueur peut varier de quelques cm à des dizaines de mètres [CHOAT et collab., 2008, 2006; SPERRY et collab., 2005].

Perforations Les éléments de vaisseau sont connectés entre eux par les perforations aux joints où les doubles cloisons terminales entre deux éléments de vaisseau ont été résorbées. La perforation peut être simple, c'est-à-dire une ouverture circulaire unique; ou scalariforme, si la cloison terminale est perforée sous formes de barreaux d'échelles (voir Fig.1.28). Chez les feuillus, la perforation simple, plus efficace en transport hydraulique, est plus courante que la perforation scalariforme [WHEELER et collab., 2007].

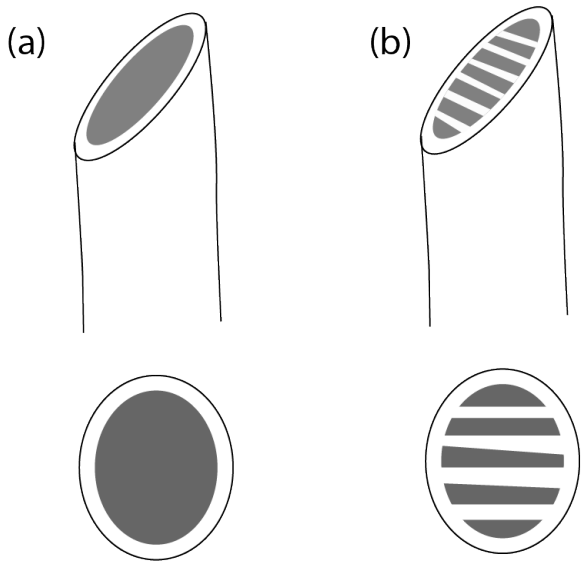


FIGURE 1.28 – Représentation schématique des différentes types de perforation. (a) perforation simple, ou perforation unique. (b) perforation scalariforme. En haut, vue de coté; en bas, vue transversale.

SCHULTE et CASTLE [1993] ont réalisé des simulations par éléments finis pour calculer l'effet des perforations scalariformes sur la perte de pression le long des vaisseaux. Leurs résultats montrent que les perforations scalariformes ne contribuent que pour 8% à la perte de pression totale lorsque le flux traverse le vaisseau en entier. ZWIENIECKI et collab. [2001] ont mesuré directement le débit du flux d'eau à une pression constante au sein d'un vaisseau individuel avec des perforations simples. La conductivité hydraulique, définie comme le débit volumétrique du flux divisé par le gradient le long d'un vaisseau, est

en bon accord avec la valeur théorique dans le cas d'une conduite cylindrique selon la loi de Poiseuille. En conclusion, nous pouvons voir que les perforations, qu'elles soient simples ou scalariformes, ne contribuent que pour une petite fraction à la résistance hydraulique totale pour un flux dans un vaisseau.

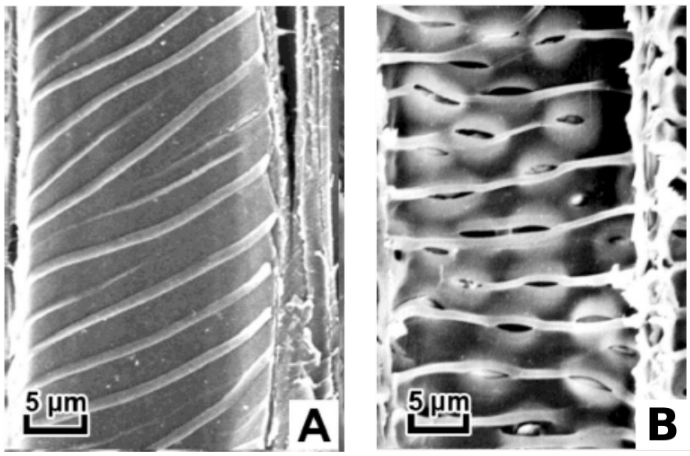


FIGURE 1.29 – Images au MEB montrant les épaississements des vaisseaux [CARLQUIST, 2012] : **(A)** *Tilia americana*. Épaississements spiralés avec des bouts effilés. **(B)** *Prostanthera rotundifolia*. Épaississements spiralés avec des épaisseurs bien définies, associés avec des ponctuations.

Épaississements spiralés Un autre aspect de la morphologie des vaisseaux est constitué par les épaississements spiralés sur les parois de vaisseaux chez certaines espèces. Tous les vaisseaux n'ont pas des parois lisses comme nous pourrons le voir plus loin dans le cas de peuplier (voir Section.2.1.1.4). En revanche, les parois secondaires des vaisseaux de nombreuses espèces présentent souvent des épaississements spiralés (voir Fig.1.29). La raison physiologique des épaississements spiralés n'est pas encore claire, mais il a été suggéré qu'ils pourraient améliorer la mouillabilité des parois ou empêcher l'embolie dans les vaisseaux [CARLQUIST, 2012; KOHONEN et HELLAND, 2009].

Ponctuations dans les vaisseaux Sur les parois des vaisseaux, nous pouvons observer différents types de ponctuations : les ponctuations intervasculaires, les ponctuations entre vaisseau et rayon ligneux (parenchyme radial) et les ponctuations entre vaisseau et parenchyme longitudinal.

Les vaisseaux dans un bois de feuillu peuvent être solitaires ou accolés, autrement dit deux vaisseaux partagent une paroi commune. Les ponctuations situées sur les parois communes entre deux vaisseaux sont dites intervasculaires. Elles sont souvent aréolées avec une taille variable.

Une grande différence entre les ponctuations chez les résineux et celles chez les feuillus se situe au niveau de la membrane. Contrairement aux membranes des ponctuations chez les résineux qui peuvent fonctionner comme une petite « valve », les membranes

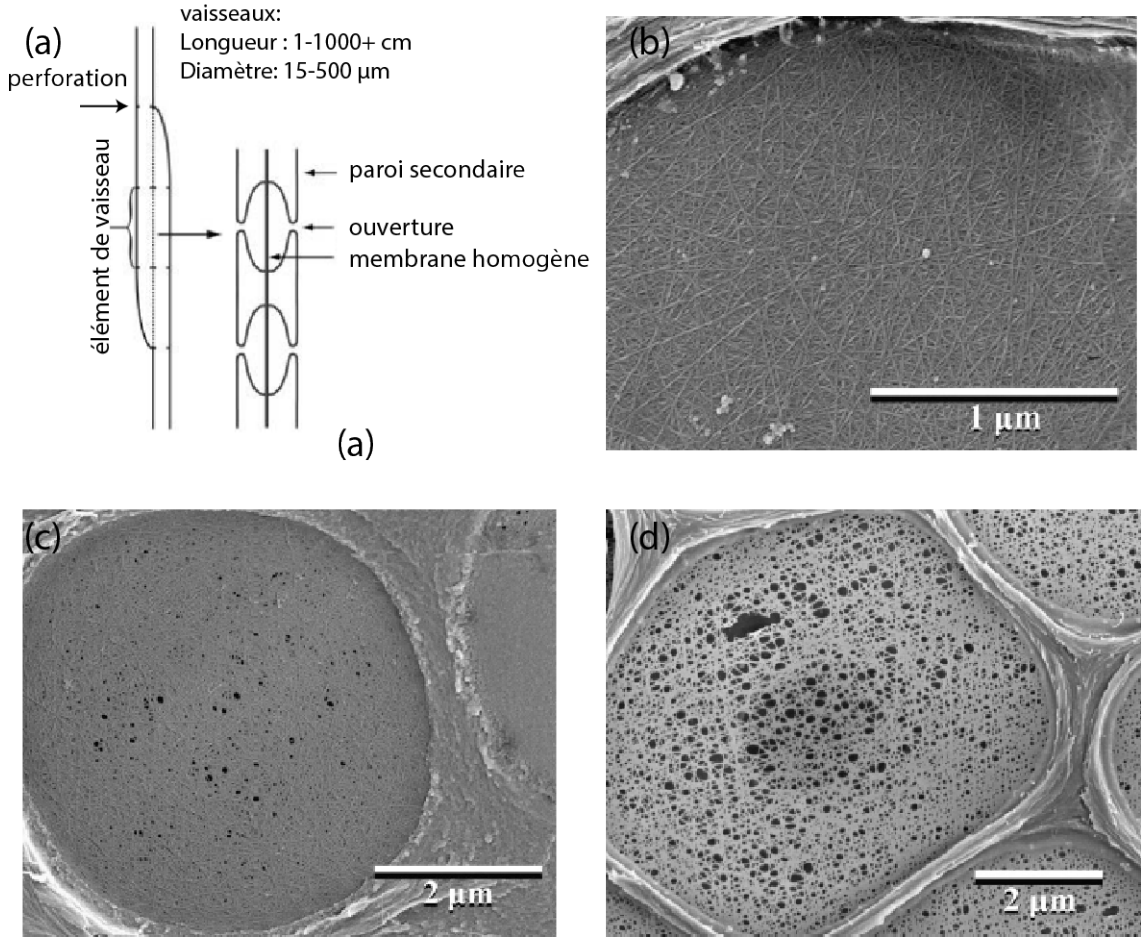


FIGURE 1.30 – **(a)** Représentation schématique de la structure des vaisseaux et leurs ponctuations. Chaque vaisseau est constitué d'un empilement d'éléments de vaisseau, connectés entre eux par des perforations (ce schéma montre des perforations simples). Les vaisseaux communiquent entre eux par des ponctuations aréolées avec une membrane homogène. Adapté de CHOAT et collab. [2008]. De (b) à (d) : images au meb montrant la morphologie des membranes homogènes chez les feuillus [JANSEN et collab., 2009] : **(b)** détails d'une membrane (*Quercus robur*) montrant des orientations aléatoires de microfibrils sans pores visibles ; **(c)** membrane (*Sophora japonica*) avec des pores de diamètre de 20-100 nm ; **(d)** membrane très poreuse (*Salix alba*) avec des pores de diamètre de plus de 200 nm.

des ponctuations chez les feuillus présentent une structure simple avec un dépôt homogène de microfibrilles à travers toute la surface de membrane (voir Fig.1.30). La taille des pores sur ces membranes homogènes est elle-même aussi très variable, de quelques nm jusqu'à des centaines de nm (voir Fig.1.30).

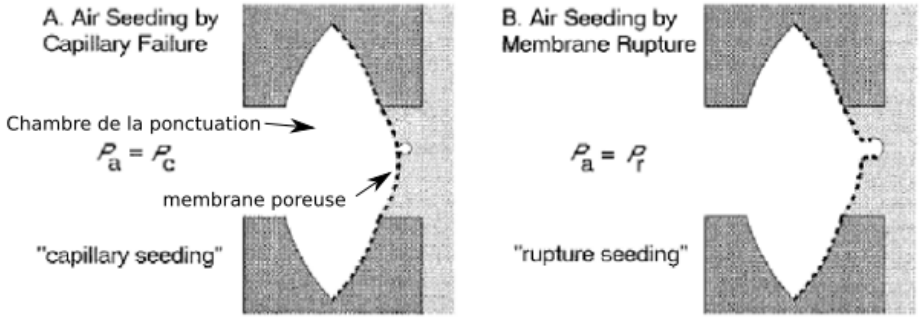


FIGURE 1.31 – Deux modes d'expansion de bulles d'air d'un vaisseau vide (gauche) à un vaisseau adjacent rempli d'eau (droite), à travers la membrane poreuse (représentée par la ligne pointillée) d'une ponctuation (coupe radiale) : **(a)** défaillance capillaire : lorsque la différence de pression P_a entre les deux côtés de la membrane est supérieure à la pression capillaire au niveau des pores P_c, l'air se propage d'un vaisseau à l'autre ; **(b)** défaillance par rupture de membrane : si la membrane présente une rupture qui impose à ce niveau un seuil de pression P_r, si $P_a > P_r$, l'air peut aussi se propager d'un vaisseau à l'autre. Extrait de [SPERRY et HACKE, 2004]

Les deux types de membrane représentent différentes solutions face au même problème : la cavitation et l'embolie. Comme illustré par la Fig.1.31, la présence de pores nanométriques sur les membranes des ponctuations chez les feuillus empêchent le passage d'interfaces eau-air d'un vaisseau vide à un vaisseau adjacent rempli d'eau. La pression nécessaire pour faire passer une interface d'eau-air doit vaincre la pression capillaire au niveau des ménisques formés dans les pores. Pour un rayon de pore de 100 nm, la pression capillaire correspond à la pression d'une colonne d'eau de 70 m de haut. Évidemment, une ponctuation qui est plus résistante à l'expansion de bulles d'air est alors moins efficace vis-à-vis de la conduction de la sève brute [KIM et collab., 2014] : plus les pores sur les membranes sont petits, plus la pression capillaire est élevée et empêche le passage des interfaces eau-air, et plus sa perméabilité est faible. Selon les études précédentes [CHOAT et collab., 2006; SCHULTE et GIBSON, 1988], les membranes de ponctuations aux extrémités des vaisseaux peut représenter 14-84% de la perte de pression totale d'un vaisseau entier.

Fibres

Les fibres désignent chez les feuillus les cellules effilées mortes à l'issue de leur différenciation, ayant un rôle de soutien mécanique. La longueur des fibres peut varier de quelques centaines de μm à quelques mm selon les espèces. La possibilité de communication entre fibres et vaisseaux ou entre fibres est faible. Les fibres disposent en effet d'un nombre de ponctuations réduit [TROUY, 2015], souvent présentes dans le plan RL.

1.2.2.3 Échelle pariétale

La paroi d'une cellule de bois est principalement composée de trois constituants chimiques :

— la cellulose ($(C_6H_{10}O_5)_n$) qui est un homopolymère linéaire, sert de squelette pour la paroi en formant des microfibrilles. Elle se présente souvent sous forme cristalline. Sa structure moléculaire est donnée par la Fig.1.32. Elle représente 45 -50 % de masse du bois.

— les hemicelluloses (son nom signifie littéralement « à moitié cellulose ») sont des hétéropolymères ramifiés, constitués d'une variété de monomères. Elles forment la matrice de la paroi qui représente entre 20 et 25% de la masse totale.

— la lignine sert de « ciment » (ou liant) qui comble les espaces vides de la paroi. Elle donne aussi la rigidité aux parois et représente 20-30 % de la masse totale.

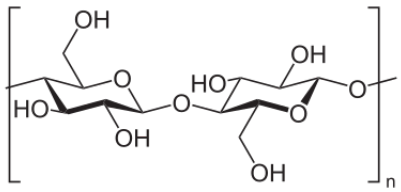


FIGURE 1.32 – Structure moléculaire de cellulose.

La cellulose et les hémicelluloses possèdent des groupements OH abondants, comme nous pouvons le voir sur la Fig.1.32. Ces groupements OH qui peuvent former des liaisons hydrogènes avec des molécules d'eau sont à l'origine de l'adsorption d'eau dans le bois. Cependant, grâce à la linéarité et sa composition homogène, l'arrangement ordonné des chaînes de cellulose forme des zones cristallines par des liaisons hydrogènes internes, où l'eau n'a pas d'accès. Ces zones cristallines de cellulose ayant une forte orientation sont appelées microfibrilles, et sont donc hydrophobes. L'interaction entre l'eau et le bois a lieu dans les régions amorphes formées par le reste des chaînes de cellulose et les hémicelluloses.

La déformation du bois, le gonflement ou le retrait, est associée aux régions amorphes d'hemicelluloses. Lorsqu'un bois sec s'imbibe d'eau, des molécules d'eau sont absorbées sur les hémicelluloses, ces derniers gonflent et écartent les microfibrilles. Ainsi, à l'échelle macroscopique, nous observons que le bois gonfle. Au contraire, lorsqu'un bois humide sèche, les molécules d'eau sont extraites et les hémicelluloses se contractent rapprochent les microfibrilles. Nous observons alors le « retrait » du bois à l'échelle macroscopique. Comme les molécules d'eau sont "liées" à des chaînes de polymère par des liaisons hydrogènes, elles sont définies comme « eau liée » , ce qui les différencie de l'eau « libre » à l'état liquide, qui se trouve dans les lumens (voir les différents états d'eau dans la section suivante).

1.3 Transferts d'eau dans le bois

1.3.1 Relation eau-bois

1.3.1.1 États de l'eau dans le bois

Dans un matériau hygroscopique tel que le bois, l'eau peut exister sous trois formes différentes : l'eau libre, l'eau liée et la vapeur d'eau :

— **Eau libre** : l'eau à l'état liquide, aussi appelée eau capillaire. Elle se trouve dans les lumens et peut circuler « librement » au sein de la structure du bois par effet capillaire.

— **Eau liée** : l'eau absorbée dans la phase solide (parois cellulaires) du bois par des liaisons hydrogènes. Elle est responsable des déformations hydromécaniques (gonflement ou retrait) du bois. Elle peut être présente en absence d'eau libre dans le domaine hygroscopique.

— **Vapeur d'eau** : il s'agit des molécules d'eau contenues dans l'air dans les lumens en équilibre thermodynamique avec les parois cellulaires sous forme de vapeur.

Dans ces conditions, les transferts d'eau dans le bois sont un phénomène complexe, impliquant des échanges entre les trois phases d'eau. Hormis la question du transport d'eau que nous allons étudier dans cette étude lorsque le bois est directement mis en contact avec de l'eau, les transferts dans le domaine hygroscopique (en contact avec l'air humide) sont aussi un sujet important, étant donné que le bois utilisé en tant que matériau est en interaction avec un environnement dans lequel l'humidité relative et la température varient. Sans présence de l'eau libre, dans le domaine hygroscopique, les transferts d'humidité se produisent selon trois processus : la diffusion de vapeur dans le milieu poreux, la sorption et la diffusion de l'eau liée dans les parois cellulaires. Un modèle simple illustrant ces trois processus est présenté dans la Fig.1.33.

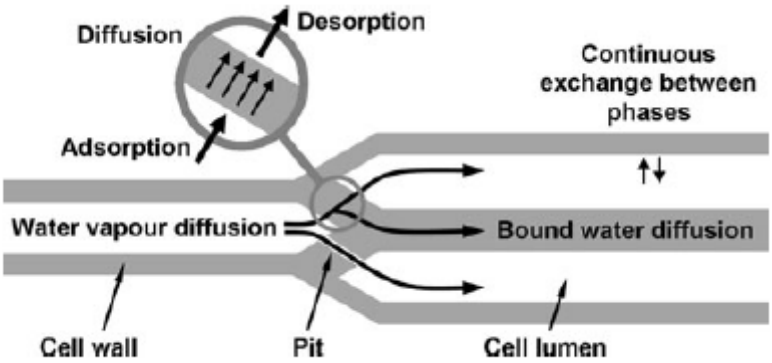


FIGURE 1.33 – Représentation schématique du transport d'humidité dans les résineux dans le domaine hygroscopique. Modèle proposé par KRABBENHOFT et DAMKILDE [2004].

1.3.1.2 Teneur en eau

La teneur en eau, ou quantité MC (*Moisture Content* en anglais), est un concept important en sciences du bois car plusieurs propriétés physiques dépendent directement de cette donnée. Elle s'exprime par le ratio (en pourcentage) entre la quantité d'eau présente m_{eau} et la masse de bois anhydre $m_{anhydre}$:

$$\mathrm{MC}(\%) = \frac{m_{eau}}{m_{anhydre}} \times 100\% = \frac{m_{bois} - m_{anhydre}}{m_{anhydre}} \times 100\% \tag{1.26}$$

La masse anhydre représente la masse des polymères du bois qui ne contient pas d'eau. Théoriquement elle correspond à la masse du bois à l'équilibre avec 0% HR [SIAU, 1984]. La teneur en eau décrit la quantité totale d'eau dans le bois sans distinguer les trois phases d'eau : eau liée, eau libre et vapeur d'eau.

1.3.1.3 Bois vert et point de saturation des fibres

La teneur en eau dans le bois peut varier de 0% (état anhydre) à la valeur maximale entre 150 à 180 % selon les espèces. Selon la teneur en eau, les trois phases d'eau ne sont pas toujours présentes en même temps. Fraichement abattu et jamais séché, le bois se trouve dans un état « vert ». Dans cet état, les parois cellulaires sont saturées en eau liée, et les lumens sont partiellement remplis d'eau liquide et de vapeur d'eau. L'ordre de grandeur de la teneur en eau pour les feuillus est 80-120% dans l'aubier et 60-100% dans le duramen [PERRÉ et BADEL, 2006].

Le séchage réduit d'abord la quantité d'eau libre dans le bois. Au fur et à mesure de l'évaporation d'eau libre, la teneur en eau dans le bois diminue jusqu'à un point de transition à partir duquel les parois cellulaires commencent à se désaturer. Le point de saturation des fibres est un concept important en science du bois. Cette définition est d'abord proposée par TIEMANN [1906], qui décrit la teneur en eau à partir de laquelle il n'y a plus d'eau libre dans les lumens durant le séchage, les parois cellulaires commencent à se désaturer et les propriétés mécaniques du bois commencent à augmenter. Autrement dit, le PSF définit la quantité d'eau maximale qui peut être adsorbée sur les polymères dans les parois cellulaires [SIMPSON et BARTON, 1991]. En dessous du PSF, seules l'eau liée et la vapeur d'eau sont présentes dans le bois. Au-delà du PSF, les trois phases d'eau coexistent. La valeur du PSF varie entre 20-40% selon les espèces, mais en général on considère que le PSF est autour de 30 % pour les espèces de régions tempérées.

La définition du PSF a soulevé des questions ces dernières années. Plusieurs études utilisant la résonance magnétique nucléaire ont montré que le bois peut contenir de l'eau libre même si les parois cellulaires ne sont pas saturée en eau liée [ALMEIDA et collab., 2007; ARAUJO et collab., 1992; MENON et collab., 1987; TELKKI et collab., 2013]. De ce fait, la définition du PSF reste ambigüe. STONE et SCALLAN [1965] ont redéfini le PSF comme « la quantité maximale de la teneur en eau dans les parois cellulaires », et nous allons utiliser cette définition dans cette étude.

1.3.1.4 Déformations hygromécaniques

La variation de teneur en eau liée dans les parois cellulaires entraîne la déformation macroscopique du bois. Le bois gonfle lorsqu'il absorbe de l'eau liée dans ses parois, et il se contracte quand il perd de l'eau liée. Ces propriétés hygromécaniques du bois ne sont pas les mêmes selon les trois directions de référence. Selon la norme Afnor 51-006, le retrait du bois est défini entre deux états de référence : l'état saturé (parois saturées en eau liée) et l'état anhydre (teneur en eau liée nulle) :

$$\varepsilon = \frac{L_s - L_a}{L_a} \times 100 \tag{1.27}$$

où ε est le retrait en %, L_s la longueur mesuré en état saturé et L_a la longueur anhydre.

En général, le retrait tangentiel est plus important que le retrait radial, et $\varepsilon_T/\varepsilon_R$ varie entre 1 et 2. En revanche, le retrait longitudinal est très faible, souvent de l'ordre voire notablement inférieur à 1%. Le Tableau.1.1 donne les ordres de grandeur du retrait pour quelques essences courantes, y compris les 4 essences étudiées dans cette étude.

Éssence	Retrait tangentiel (%)	Retrait radial (%)
Peuplier	9	5
Charme	11,5	7
Chêne	10	5
Frêne	8	6
Hêtre	12	16
Douglas	7	4
Mélèze	9	5
Sapin	8	4

TABLEAU 1.1 – Ordres de grandeur pour quelques essences courantes, d'après [LEBOUCHER].

À cause de cette anisotropie du retrait, même si les morceaux de bois ont la même teneur en eau, selon la façon dont ils sont découpés, ils peuvent se déformer différemment (voir Fig.1.34). Cela explique pourquoi lorsqu'on sèche des rondelles de bois, on voit souvent des fentes qui apparaissent dans la direction radiale.

1.3.1.5 Isotherme de sorption

Étant hygroscopique, le bois interagit avec l'humidité dans l'air : la teneur en eau augmente lorsque l'humidité relative croît (adsorption) ou elle diminue quand l'humidité relative décroît (désorption). La teneur en eau à l'équilibre en fonction de l'humidité relative dans l'air à température constante est appelée isotherme de sorption. La Fig.1.35 montre la forme sigmoïdale typique de l'isotherme de sorption du bois. Nous pouvons observer que la teneur en eau à l'équilibre dépend aussi de la température. La valeur du PSF diminue approximativement de 0,1 % par degré.

Comme pour beaucoup de matériaux poreux, on constate un phénomène d'hystérésis lorsqu'on effectue un cycle absorption-désorption (voir Fig.1.36) : les isothermes d'adsorption et de désorption ne sont pas les mêmes. Pour une HR donnée, la teneur en

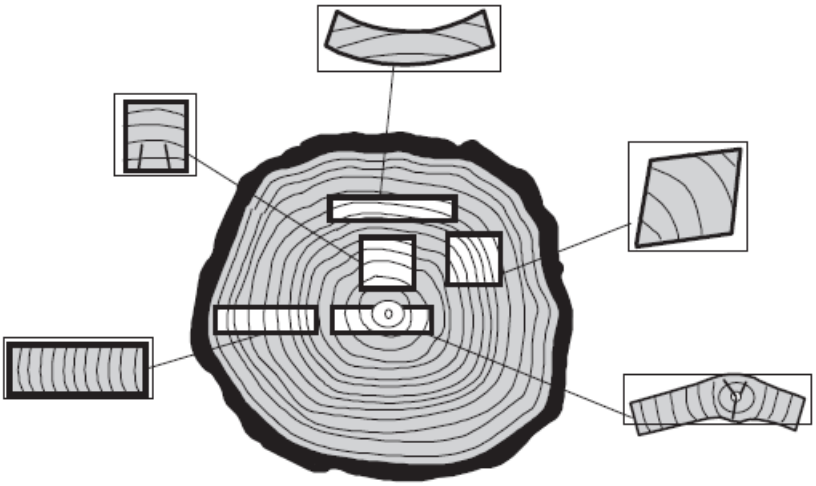


FIGURE 1.34 – Déformation des débits selon leur localisation dans le billon. D'après PERRÉ et BADEL [2006]

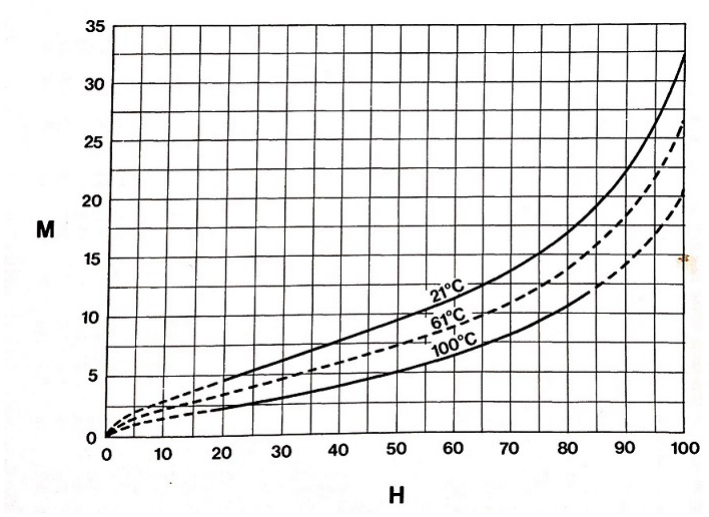


FIGURE 1.35 – Isothermes de sorption du bois à trois températures : 21°C, 61°C et 100°C. Image extraite de SIAU [1984].

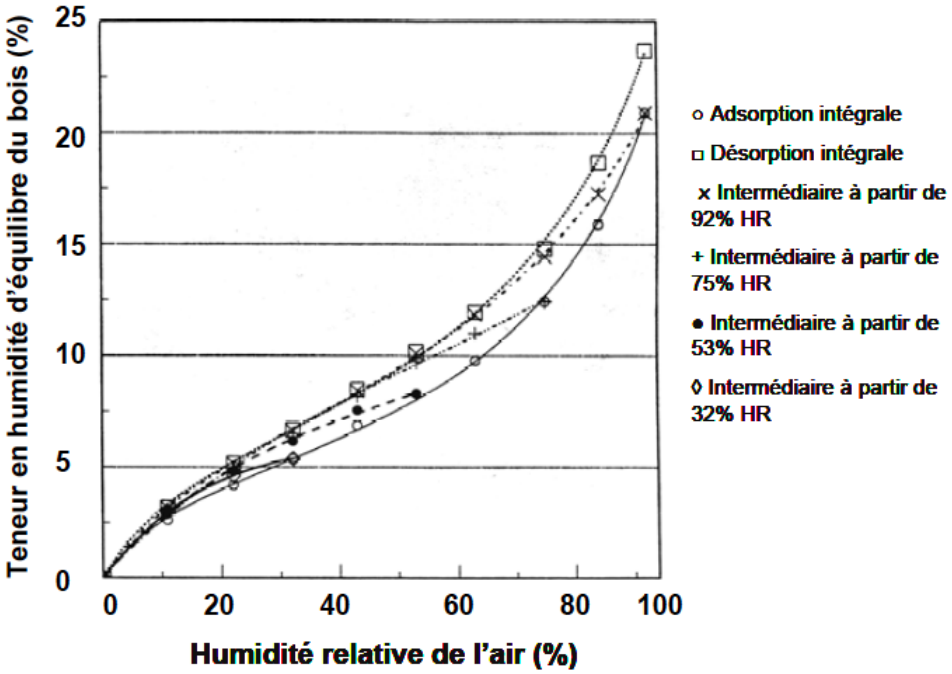


FIGURE 1.36 – Courbes de sorption obtenues pour l'adsorption et la désorption intégrale et pour les désorptions intermédiaires à 30 °C. D'après PERALTA [1995].

eau pendant la désorption est plus grande que celle pendant l'adsorption. Pour toutes les courbes de désorption intermédiaires à partir de faibles HR, on observe toujours un cycle d'hystérésis (voir Fig.1.36). D'après NAVI et HEGER [2005], le cycle d'hystérésis résulte de deux facteurs : l'influence de la contrainte compressive pendant l'adsorption qui accompagne le gonflement du bois; et la réhydratation incomplète des sites d'adsorption de la cellulose après une adsorption.

1.3.1.6 Mouillabilité du bois

Comme on l'a vu dans la section 1.1.1.4, la mouillabilité joue un rôle important sur les propriétés de transferts de liquide dans le matériau étudié. L'angle de contact d'un liquide sur la surface d'un échantillon de bois qui est une structure poreuse, déformable et hygroscopique, n'est pas un paramètre qui peut être directement déterminé à partir des énergies de surface; il dépend aussi de la rugosité de la surface de contact, de l'hétérogénéité de la structure, de l'adsorption de liquide et du gonflement du matériau [DE MEIJER et collab., 2000; PIAO et collab., 2010]. Le vieillissement du bois [NGUYEN et JOHNS, 1979] et la quantité d'extractibles [CHEN, 1970; HSE et KUO, 1988; NYLUND et collab., 1998] peuvent aussi influencer la mouillibité du bois. Deux méthodes classiques sont largement utilisées dans la littérature pour mesurer l'angle de contact : la méthode de la goutte sessile (mesure directe du profil d'une goutte de liquide déposée sur une surface horizontale ou inclinée du bois) [CHEN, 1972; LEE et collab., 2007; LU et WU, 2006] ; et la méthode de la plaque de Wilhelmy (contact d'une plaque de bois dans le liquide étudié) [MANTANIS et YOUNG, 1997; WÅLINDER et STRÖM, 2001]. Les travaux de WÅLINDER et STRÖM [2001]

et de De Meijer et collab. [2000] fournissent une synthèse des résultats obtenus avec les deux méthodes. La valeur typique de l'angle de contact entre l'eau et le bois rapportée dans la littérature s'échelonne entre 50 et 80°.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons à l'angle de contact au sein de la microstructure du bois. Compte tenu des effets présentés ci-dessus on s'attend aussi à ce que l'angle de contact dans les lumens soit différent de celui pour une surface de bois pleine (à l'échelle macroscopique). La mesure directe de l'angle de contact dans les lumens du bois étant difficile, il y a moins d'études disponibles dans la littérature. Kohonen [2006] a étudié l'impact de la rugosité des parois de lumen sur la mouillabilité des vaisseaux dans le xylème, à l'aide de la microscopie optique. Contrairement à des espèces venant d'un habitat humide avec des parois lisses qui montrent un grand angle de contact (~ 60°), des espèces venant d'un habitat sec ayant des parois rugueuses montrent plutôt un angle de contact proche de zéro. Zwieniecki et Holbrook [2000] ont mesuré l'angle de contact entre l'eau et les lumens des vaisseaux dans six espèces. Ils ont observé que l'angle de contact dans les lumens des vaisseaux varie entre 42 et 55°, tandis que celui dans les ouvertures des ponctuations intervasculaire se trouve entre 144 et 157°. Schneider et collab. [2000] ont mesuré la dynamique de la remontée capillaire de l'eau dans une plante *Myrothamnus* à l'état sec et ont obtenu 70-80° pour l'angle de contact dans les vaisseaux. Ils ont également observé que cet angle de contact diminue avec la rehydratation de la plante.

Une étude récente [McCully et collab., 2014] a examiné la mouillabilité des vaisseaux avec l'eau et une huile minérale. Leurs observations suggèrent que les parois des vaisseaux peuvent être à la fois hydrophile et hydrophobe à l'échelle microscopique : les vaisseaux initialement vides (remplis de gaz) sont hydrophobes, tandis que les vaisseaux remplis d'eau montre un bon mouillage avec l'eau. L'affinité de l'huile avec les vaisseaux est plus faible que celle de l'eau : l'huile peut être remplacée par l'eau mais pas l'inverse. D'après les auteurs, l'huile n'entre jamais dans la chambre des ponctuations.

1.3.2 Revue bibliographique sur les transferts d'eau dans le bois

1.3.2.1 Imbibition dans le bois

Observations générales En raison de sa structure poreuse, la pénétration d'un liquide dans un morceau de bois peut être considérée analogue à la remontée capillaire dans un milieu poreux avec des rayons de pores bien définis. Par exemple, une simple expérience d'imbibition avec de l'eau colorée (voir Fig.1.37) montre la pénétration du liquide dans les lumens d'un échantillon de pin.

À l'aide de la radiographie aux neutrons, Kucerova [2012] a étudié la pénétration d'une solution de xylène dans la direction longitudinale d'un échantillon de Tilia (feuillu). Sur la Fig.1.38, on peut observer un processus classique d'imbibition capillaire : la pénétration sous forme d'un front qui avance progressivement dans le milieu, et la vitesse de montée diminue avec le temps.

La Fig.1.39 montre l'évolution de la masse d'eau absorbée en fonction de la racine carrée du temps pendant l'imbibition dans la direction des fibres. D'après ces études pré-

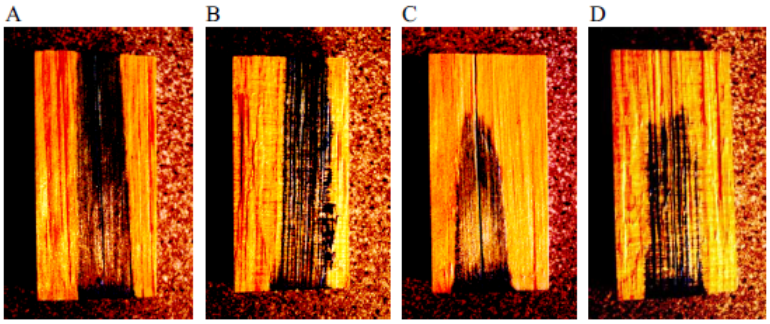


FIGURE 1.37 – Pénétration d'eau colorée dans un échantillon de *Pinus sylvestris L.* [SEGERHOLM et CLAESSON, 2008]. **(A)** Après 75 h d'imbibition, plan tangentiel. **(B)** 75 h, plan radial. **(C)** 18 h, plan tangentiel. **(D)** 18 h, plan radial.

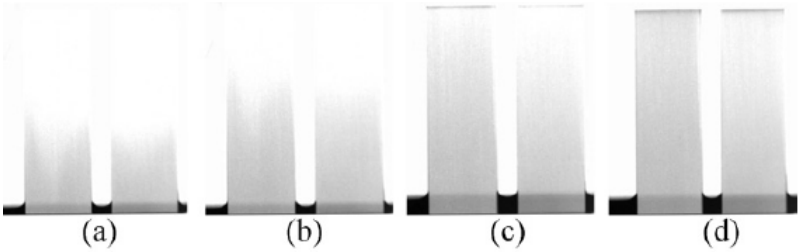


FIGURE 1.38 – Visualisation par radiographie aux neutrons de la pénétration d'une solution de xylène dans la direction longitudinale d'un échantillon de tilia. La hauteur de l'échantillon est 6 cm. De (a) à (d) : images à 1, 2, 5 et 10 minutes [KUCEROVA, 2012].

cédentes, pour les deux types de bois, feuillu et résineux, la masse d'eau absorbée évolue de façon linéaire avec la racine carrée du temps [JOHANSSON et SALIN, 2011; SEDIGHI-GILANI et collab., 2014]. Ces constatations suggèrent un comportement typique de Washburn (voir Section.1.1.1.3).

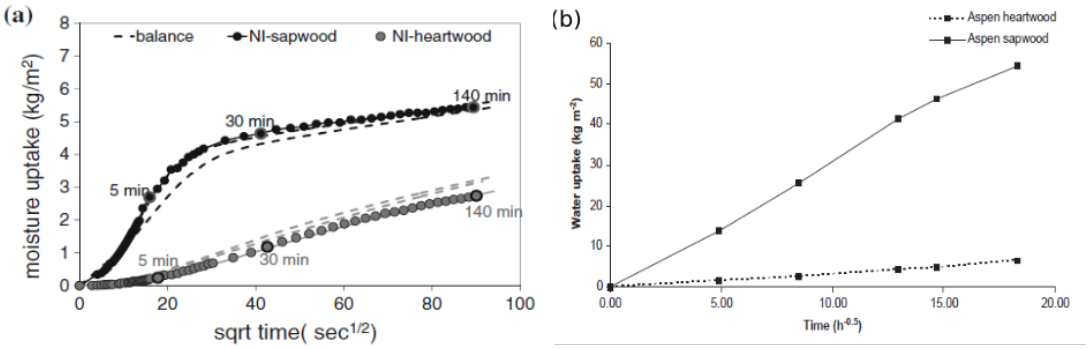


FIGURE 1.39 – Évolution de la teneur en eau en fonction de la racine carrée du temps pendant l'imbibition longitudinale. **(a)** dans l'aubier et le duramen du pin [SEDIGHI-GILANI et collab., 2014]. **(b)** dans l'aubier et le duramen du hêtre [JOHANSSON et SALIN, 2011].

Observations internes et modélisation Dans les sections précédentes, nous avons vu que les résineux et les feuillus disposent d'un système hydraulique complètement différent vis-à-vis du mode de conduction de la sève et de la stratégie pour empêcher la circulation de bulles d'air. Bien qu'il existe de nombreuses études sur les transferts d'eau dans les résineux, seules quelques études sont disponibles concernant les feuillus, laissant encore des questions ouvertes et des observations non interprétées.

D'après les observations décrites ci-dessus, il semblerait que l'imbibition dans le bois suive la loi de Washburn. Selon SIAU [1984], pour modéliser l'écoulement longitudinal dans la structure du bois de feuillu, le modèle classique avec des tubes capillaires parallèles est souvent utilisé. Cependant, il a été admis que ce modèle est un cas idéal qui ne prend pas en compte tous les éléments structuraux du bois (la longueur limitée des vaisseaux, les ponctuations et les perforations, etc). Quelques modèles ont ensuite été proposés pour expliquer les phénomènes particuliers observés (voir le texte ci-dessous).

PERRÉ [2000] a étudié le transport de fluide (air ou eau) en régime permanent dans un feuillu (le hêtre). Il constate que la perméabilité aux gaz de l'échantillon n'est pas un paramètre intrinsèque mais varie en fonction de la longueur de l'échantillon testé (voir Fig.1.40.a). De plus, ses expériences d'imbibition par injection avec de l'eau colorée dans un échantillon de quelques cm révèlent un grand écart entre la vitesse de pénétration théorique selon la loi de Darcy (2 minutes) et les résultats expérimentaux (plusieurs jours). Il en conclut que seul un modèle statistique était capable d'expliquer toutes ces observations. Dans ce type de modèle [ADLER, 1992; DULLIEN, 1992], le bois est considéré constitué de petits éléments (des pores) interconnectés par des joints avec une probabilité de passage pour le liquide. Lorsqu'un fluide est injecté depuis une surface extérieure, seules les pores connectés sont responsables du transport du fluide. Ce concept permet d'expliquer la perméabilité en fonction de la longueur de l'échantillon, la fraction de pores actifs qui dépend de la localisation au sein de l'échantillon et de la longueur de

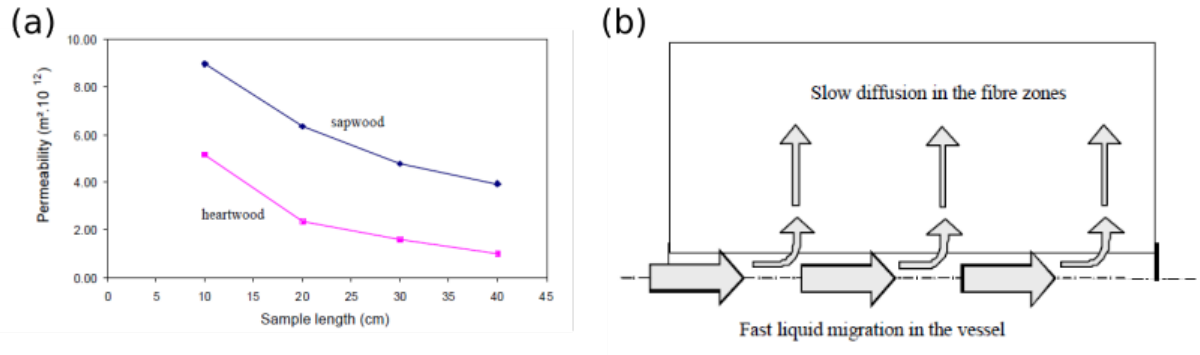


FIGURE 1.40 – **(a)** Effet de la longueur d'échantillon sur la perméabilité aux gaz. **(b)** Schéma de la structure du transport de fluide dans les feuillus selon un modèle de double porosité [PERRÉ, 2000].

l'échantillon, etc. PERRÉ [2000] a finalement utilisé ce type de modèle (appelé modèle de percolation) pour interpréter les mécanismes de transferts d'eau dans le hêtre par une approche de double porosité (sans distinguer l'eau liée et l'eau libre) : une migration rapide dans la zone de vaisseaux dans un premier temps puis une diffusion lente dans la zone de fibres (voir Fig.1.40).

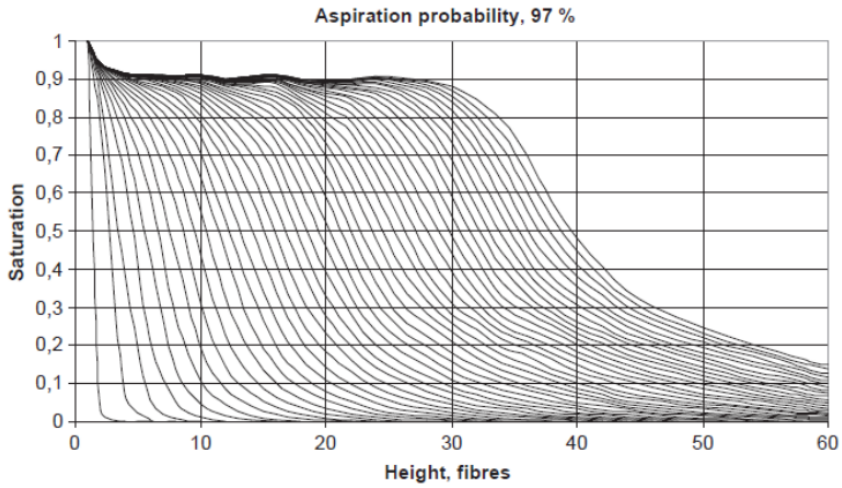


FIGURE 1.41 – Simulation du processus d'absorption d'eau dans le bois, exprimé en degrés de saturation dans différentes couches de fibres selon la direction des fibres [JOHANSSON et SALIN, 2011]. Probabilité d'aspiration des fibres = 97%.

Le même modèle a été utilisé plus tard dans les travaux de SALIN [2008]; SANDBERG et SALIN [2012] pour étudier les transferts d'eau dans les résineux. [JOHANSSON et SALIN, 2011] ont adapté le modèle de percolation pour la compréhension de l'imbibition capillaire dans l'aubier et le duramen du peuplier. Bien que leur résultat de simulation (voir Fig.1.41) semble présenter une forme similaire aux profils de teneur en eau obtenus expérimentalement (voir Fig.1.42), il reste insatisfaisant, d'une part parce que le modèle ne prend pas en compte les caractéristiques de la structure du feuillu (le flux dans les vais-

seaux devrait être continu), et d'autre part, il ne fournit pas une analyse quantitative de la dynamique de pénétration d'eau.

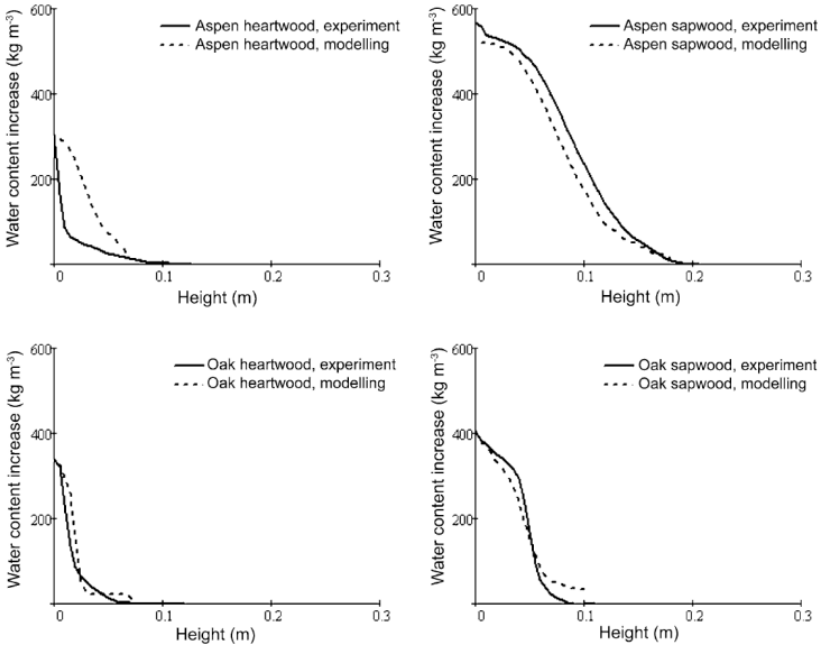


FIGURE 1.42 – Modélisation et les résultats expérimentaux de la distribution d'eau en fonction de la hauteur après 14 jours de l'imbibition capillaire. (a) duramen du peuplier (b) aubier du peuplier (c) duramen du chêne et (d) aubier du chêne [JOHANSSON et KIFETEW, 2010].

KRABBENHOFT et DAMKILDE [2004] ont discuté de l'application de trois types de modèle selon les mécanismes proposés par PERRÉ [2000] (voir Fig.1.43) : (i) un modèle continu simple, où le fluide se transfert de l'élément FM1 à FM3 ; (ii) un modèle de double porosité qui présente deux zones, une zone principale (F1-3) et une zone secondaire (M1-3). Le transport s'effectue principalement dans la zone F1-3 qui sert de réservoir pour des échanges avec la zone secondaire ; (iii) un modèle de double perméabilité, une généralisation du modèle de double porosité mais qui prend en compte le flux dans toutes les deux zones. Les auteurs ont réalisé des simulations numériques et comparé ces trois modèles avec les distributions d'eau mesurées expérimentalement. Il semble que les modèles de double porosité ou double perméabilité soient capables d'expliquer la forme générale des profils de saturation au cours de l'infiltration d'eau (voir Fig.1.44) : un front de propagation progressant rapidement dans la direction d'imbibition et une infiltration plus lente en dessous du front. Cependant, les auteurs ont admis que ces modèles n'étaient pas cohérents avec la loi de Darcy avec la pression du flux comme force motrice.

Ces modèles existants semblent se focaliser sur la structure du milieu mais mettent de côté un aspect important du phénomène de transfert d'eau dans le bois : l'adsorption de l'eau liée ainsi que le rôle que pourrait jouer l'eau liée sur la dynamique de l'imbibition. Les observations récentes dans les résineux par IRM [ALMEIDA et collab., 2008], radiographie aux neutrons [DESMARAIS et collab., 2016; SEDIGHI-GILANI et collab., 2012, 2014],

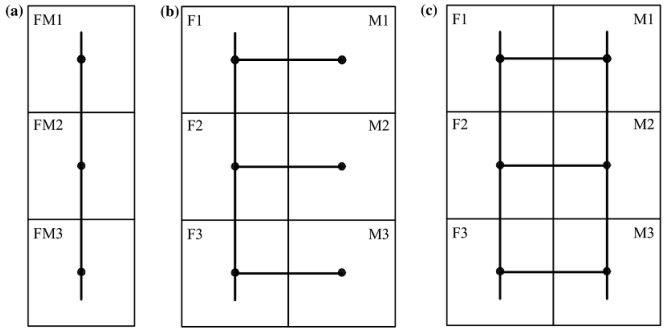


FIGURE 1.43 – Modèles de transport : (a) modèle continu (b) modèle de double porosité (c) modèle de double perméabilité [KRABBENHOFT et DAMKILDE, 2004].

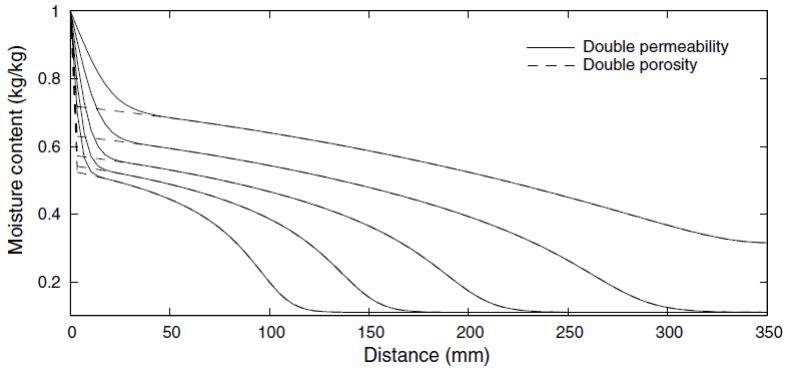


FIGURE 1.44 – Simulation d'infiltration d'eau en 1D selon les modèles de double porosité et double perméabilité : profils de teneur en eau après 2, 4, 8, 16 et 32 jours [KRABBENHOFT et DAMKILDE, 2004].

ou les résultats de l'adsorption de vapeur [DVINSKIKH et collab., 2011], ont suggéré que des interactions entre les transferts d'eau liée et d'eau libre pourraient se produire, sans déterminer précisément l'impact sur la dynamique d'eau.

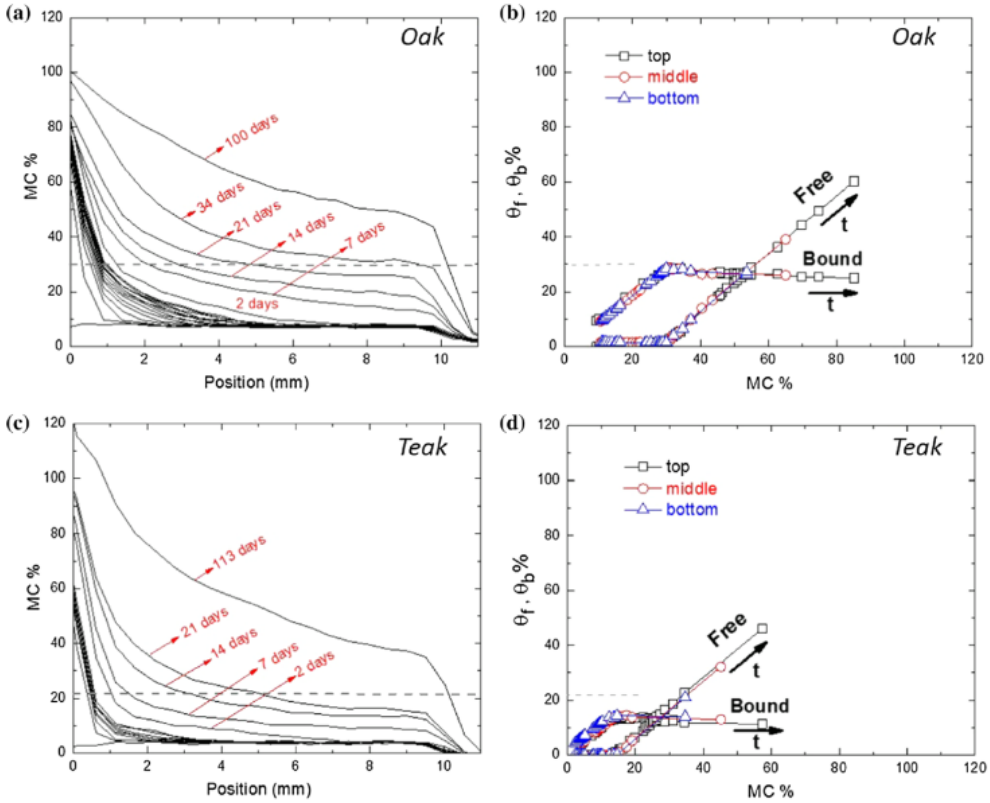


FIGURE 1.45 – Profils de teneur en eau pendant l'imbibition du bois de chêne (a) et du bois de teck (c). Les fractions massiques de l'eau liée et de l'eau libre en fonction de la teneur en eau totale pour le chêne(b) et le teck (d) à trois positions différentes [GEZICI-KOÇ et collab., 2017].

En effet, le bois en état initial est rarement au PSF, ce qui signifie qu'au cours de la pénétration d'eau liquide une partie d'eau non négligeable peut se transformer en eau liée. Dans les travaux récents de GEZICI-KOÇ et collab. [2017], les auteurs ont étudié la distribution de l'eau liée et de l'eau libre au cours de l'imbibition dans deux bois de feuillu et un résineux à l'aide de l'IRM. Leurs observations (voir Fig.1.45) révèlent que l'eau libre ne peut apparaître que dans des endroits où les parois cellulaires sont déjà saturées en eau liée. Ils en ont conclu qu'il y a toujours localement un équilibre thermodynamique entre l'eau liée et l'eau libre, et que l'eau liée joue un rôle très important dans les processus de transfert. Ces résultats ont finalement conduit les auteurs à décrire les transferts d'eau dans le bois par une diffusivité globale résultant de trois processus : diffusion de la vapeur, transfert d'eau liée et transfert d'eau libre.

Problématique de recherche Après avoir introduit la physique fondamentale de l'imbibition capillaire dans un milieu poreux ainsi que l'anatomie du bois, nous voyons apparaître une problématique de recherche :

1. Bien que le modèle de percolation ou les modèles à double porosité semblent bien représenter la structure des résineux (constituée de cellules interconnectées par des ponctuations), ils ne sont pas cohérents avec le système hydraulique des feuillus constitués de conduites cylindriques (les vaisseaux), où la résistance de structure et la probabilité de conduction semblent inexistantes.
2. Les constatations déjà établies dans la littérature sont en effet contradictoires : par exemple, nous venons de voir dans les travaux de PERRÉ [2000] qu'un grand écart de plusieurs ordres de grandeur de la vitesse de pénétration d'eau est observé entre la loi de Darcy et les résultats d'imbibition avec le hêtre. De l'autre côté, les calculs réalisés par SCHULTE et CASTLE [1993], ainsi que les mesures réalisées directement au sein d'un unique vaisseau par ZWIENIECKI et collab. [2001], prouvent que les vaisseaux (qui représentent 20-60% du volume de bois) se comportent comme des tubes capillaires simples. Quelle est alors l'origine de cet écart de plusieurs ordres de grandeur ?
3. L'impact des échanges entre eau libre et eau liée reste non éclaircie. La diffusion de l'eau liée et l'imbibition capillaire dans le milieu poreux sont souvent considérés comme deux processus indépendants mais ayant lieu simultanément lorsque le bois est mis en contact avec de l'eau. Nous avons vu dans les travaux de GEZICI-KOÇ et collab. [2017] que l'eau liée diffuse plus vite que la pénétration d'eau libre et que l'eau libre ne peut être présente que lorsque l'eau liée est en saturation dans les parois cellulaires. Comment l'eau liée et l'eau libre interagissent et par quel mécanisme ces interactions influencent l'imbibition capillaire d'eau libre ?
4. Afin de comprendre les conséquences de l'interaction entre le liquide imbibé et le squelette du bois sur la dynamique d'imbibition, il apparait intéressant de comparer les écoulements d'eau avec les écoulements de fluides apolaires, qui ne forment pas des liaisons hydrogènes et *a priori* n'interagissent pas avec les parois. Ces interactions ne sont en effet pas prises en compte dans le modèle de Washburn, selon qui la dynamique d'imbibition dépend de la perméabilité et des conditions de mouillage. Etant donné que la perméabilité est un paramètre intrinsèque du milieu poreux, pour le même milieu on peut donc s'attendre à observer que la vitesse de pénétration de liquide varie avec les conditions de mouillage. Cependant il ne semble pas exister dans la littérature une comparaison directe et quantitative entre les deux types de liquide sur ce point.

Les questions évoquées ci-dessus constituent alors l'objectif de cette thèse que nous détaillerons dans la section suivante.

1.3.2.2 Séchage du bois

Le séchage du bois fait l'objet de la deuxième partie de ce travail. Au niveau industriel, le séchage du bois vert est un processus très important, que soit pour l'utilisation du bois « matériau » (meilleures propriétés mécaniques et durabilité), ou pour le bois « énergie » (la diminution de la teneur en eau permet de diminuer de manière significative la consommation énergétique lors de la combustion). Le séchage du bois est souvent étudié dans son ensemble, sans distinction particulière entre résineux ou feuillus. On sèche souvent le bois selon les directions transversales, à cause de la contrainte dimensionnelle

de panneaux en bois [PLUMB et collab., 1985].

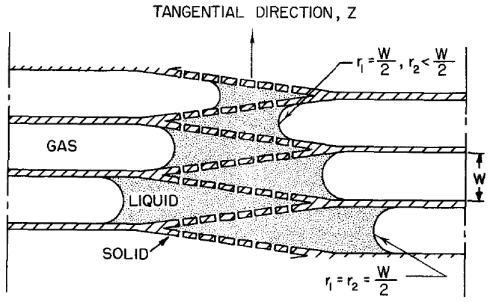


FIGURE 1.46 – Illustration montrant comment les forces capillaires permettent d'aspirer l'eau liquide dans la direction tangentielle pendant le séchage des résineux [SPOLEK et PLUMB, 1981].

SPOLEK et PLUMB [1981] ont proposé dans leurs travaux un modèle du transport capillaire pour le séchage des résineux. Ils ont montré comment un gradient de pression capillaire résulte de la structure des résineux pendant le séchage selon les directions transversales. Comme l'eau s'évapore progressivement dans les couches de cellules près de la surface de l'échantillon, il y a moins d'eau dans les lumens près de la surface que dans ceux au milieu de l'échantillon (voir Fig.1.46). Lorsque la quantité d'eau diminue dans un lumen, elle tend à rester dans les extrémités coniques du lumen qui ont un rayon plus petit que le corps cylindrique de la cellule. Ainsi, la diminution de la teneur en eau vers la surface libre forme des ménisques avec des rayons plus petits (voir Fig.1.46). Le gradient de pression capillaire résultant du gradient du rayon des ménisques permet d'aspirer l'eau libre à travers le milieu.

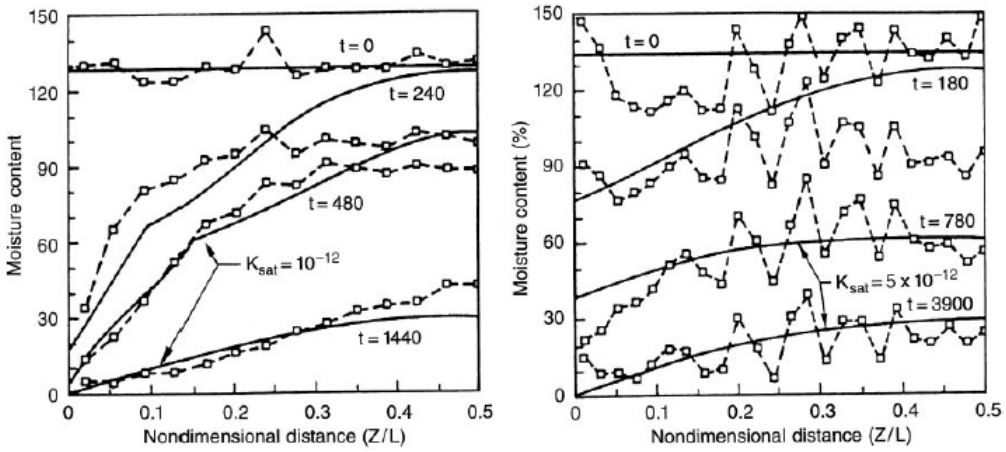


FIGURE 1.47 – Profils de teneur en eau à différents moments de deux échantillons de résineux mesurés par gamma densiométrie pendant le séchage dans la direction transverse [PLUMB et collab., 1985].

Les profils de teneur en eau mesurés par gamma densiométrie dans les travaux de PLUMB et collab. [1985] montrent une désaturation homogène tant que la teneur en eau

est supérieure à 40% (voir Fig.1.47). Ces résultats suggèrent une redistribution de l'eau libre par effet capillaire dans la structure interne du bois. Les observations similaires ont été signalées dans les travaux récents [GEZICI-KOÇ et collab., 2017; WIBERG et MOREN, 1999].

WIBERG [1995]; WIBERG et MOREN [1999] ont observé pendant le séchage du bois de résineaux qu'une couche sèche se forme sur quelques mm au-dessous de la surface libre, alors qu'à l'intérieur du bois la teneur en eau reste élevée. Cette couche sèche a été mise en évidence par les observations de [TERZIEV, 1994; WIBERG, 1996] qui montrent que du sucre (un extractible du bois) se transporte dans la région capillaire et s'accumule juste au-dessus de la surface du bois, donnant des taches de couleur foncée. La position de ces taches montre la localisation d'un front d'évaporation à partir duquel l'eau liquide s'évapore. Ces observations sont cohérentes avec les mesures par IRM [ROSENKILDE et collab., 2004]. A partir de ce front d'évaporation, un équilibre thermodynamique est établi : l'eau liée et la vapeur d'eau co-existent dans cette couche sèche, le taux de séchage est alors dominé par la diffusion de ces deux composants. L'accord entre les données expérimentales et un modèle analytique basé sur le concept de front d'évaporation dans l'étude de RÉMOND et collab. [2005] suggère aussi l'existence de cette couche sèche. Une augmentation de la distance entre le front sec et la surface libre lorsque la teneur en eau décroit a été mise en évidence par tomodensitométrie [WIBERG et MOREN, 1999]. Le front descendant a été également observé par IRM dans les travaux de HAMEURY et STERLEY [2006], même dans le domaine hygroscopique en-dessous du PSF.

Problématique de recherche Les observations obtenues dans les études précédentes (désaturation homogène induite par la force capillaire, diffusion à partir d'un front sec) sont qualitativement cohérentes avec le modèle de séchage introduit dans la section 1.1.2. Cependant, il manque des observations quantitatives reliant la dynamique du séchage (pour l'eau liée et l'eau libre séparément) à la structure interne du bois. En conséquence, cela constitue également un objectif de cette thèse.

1.4 Objectif de la thèse

Dans le présent chapitre, nous avons vu que l'imbibition ou le séchage d'un liquide dans un milieu poreux pouvait être bien expliqué par des propriétés du fluide et celles du milieu. Pour un fluide donné, la dynamique d'imbibition capillaire est autant plus rapide que la force motrice (pression capillaire) et la perméabilité qui, *a priori* ne dépend que de la taille des pores dans le milieu, sont grandes. La structure hétérogène du bois aux différentes échelles est présentée dans la seconde partie du chapitre. Nous avons également vu que les transferts d'eau dans le bois sont un processus complexe impliquant plusieurs phases d'eau et différents processus : la montée capillaire, la diffusion de l'eau liée et la diffusion en vapeur, etc.

Les aspects techniques font l'objet du Chapitre 2. Les propriétés des échantillons étudiés et les protocoles expérimentaux utilisés dans cette thèse sont présentées au début du chapitre. Les principes de l'IRM et de la tomographie aux rayons X sont ensuite expliqués.

On présente à la fin du chapitre la préparation d'un matériau modèle du bois à base d'hydrogel.

Le chapitre 3 est consacré au phénomène d'imbibition dans le bois et il est composé de trois parties - les résultats macroscopiques, les observations par IRM puis par tomographie aux rayons X. Les tests d'imbibition par pesées avec de l'eau ou de l'huile de silicone, permettent de caractériser le phénomène et de montrer l'incohérence entre les expériences et les modèles théoriques existants. Nous verrons ensuite par IRM les différentes dynamiques de pénétration de l'eau liée et de l'eau libre. Finalement, nous réalisons des observations fines au niveau des interfaces eau-air dans les vaisseaux à l'aide de la tomographie aux rayons X.

Dans le chapitre 4, pour vérifier que nous avons compris les mécanismes nous tentons de reproduire le phénomène avec l'imbibition dans un matériau modèle à base d'hydrogel. Nous allons voir de la même manière que, l'imbibition d'eau dans un milieu absorbant est dramatiquement ralentie par la pénétration et la diffusion de l'eau liée dans les parois de capillaires. La teneur en eau liée a directement un impact sur la forme de l'interface eau-air, elle neutralise ainsi la force capillaire qui aurait fait monter le liquide.

Enfin, pour compléter les observations sur les transferts d'eau dans le bois, dans le chapitre 5 nous étudions le séchage du peuplier dans les trois directions d'anisotropie. Les séquences d'IRM développées dans cette étude nous permettent d'étudier aussi les rôles de l'eau liée et de l'eau libre au cours du séchage du bois.

1.5 Références

ADLER, P. M. 1992, *Porous Media : Geometry and Transports, Butterworth-Heinemann Series in Chemical Engineering*, butterwort éd.. 45

ALMEIDA, G., S. GAGNÉ et R. E. HERNÁNDEZ. 2007, «A NMR study of water distribution in hardwoods at several equilibrium moisture contents», *Wood Science and Technology*, vol. 41, nº 4, doi :10.1007/s00226-006-0116-3, p. 293–307, ISSN 00437719. 39

ALMEIDA, G., S. LECLERC et P. PERRÉ. 2008, «NMR imaging of fluid pathways during drainage of softwood in a pressure membrane chamber», *International Journal of Multiphase Flow*, vol. 34, nº 3, doi :10.1016/j.ijmultiphaseflow.2007.10.009, p. 312–321, ISSN 03019322. 47

ARAUJO, C. D., A. L. MACKAY, J. R. T. HAILEY et K. P. WHITTALL. 1992, «Proton magnetic resonance techniques for characterization of water in wood : application to white spruce», *Wood Science and Technology*, vol. 113, p. 101–113. 39

BARY-LENGER, A. et J.-P. NEBOUT. 1993, *Le chêne*, ed. du per éd.. 26

BRUIL, H. G. et J. J. VAN AARTSEN. 1974, «The determination of contact angles of aqueous surfactant solutions on powders», *Colloid and Polymer Science*, vol. 252, nº 1,

doi :10.1007/BF01381692, p. 32–38, ISSN 1435-1536. URL https://doi.org/10.1007/BF01381692. 14

CAMASSEL, B., N. SGHAIER, M. PRAT et S. B. NASRALLAH. 2005, «Evaporation in a capillary tube of square cross-section : Application to ion transport», *Chemical Engineering Science*, vol. 60, nº 3, doi :10.1016/j.ces.2004.09.044, p. 815–826, ISSN 00092509. 22

CARLQUIST, S. 2012, «How wood evolves : a new synthesis», *Botany*, vol. 90, nº 10, doi : 10.1139/b2012-048, p. 901–940, ISSN 1916-2790. 31, 34

CARMAN, P. 1956, *Flow of gases through porous media*, New York Academic Pre. 19

CHATZIS, I. et A. DULLIEN. 1977, «Modelling Pore Structure By 2-D And 3-D Networks With ApplicationTo Sandstones», *Journal of Canadian Petroleum Technology*, vol. 16, doi :10.2118/77-01-09, p. 97–108. 19

CHAUVET, F., P. DURU, S. GEOFFROY, M. PRAT, F. CHAUVET, P. DURU, S. GEOFFROY, M. PRAT et T. PERIODS. 2009, «Three periods of drying of a single square capillary tube», *Physical Review Letters*, vol. 103, nº 12, p. 1–4. 22, 23

CHEN, C. 1970, «Effect of extractive removal on adhesion and wettability of some tropical woods.», *Forest Products Journal*, vol. 20, nº 1, p. 36–41. 42

CHEN, M. 1972, «Measuring the wetting of wood surfaces by adhesives.», *Mokuzai Gakkaishi*, vol. 18, nº 9, p. 451–456. 42

CHOAT, B., A. R. COBB et S. JANSEN. 2008, «Structure and function of bordered pits : New discoveries and impacts on whole-plant hydraulic function», *New Phytologist*, vol. 177, nº 3, doi :10.1111/j.1469-8137.2007.02317.x, p. 608–626, ISSN 0028646X. 29, 33, 35

CHOAT, B., T. Y. W. B. RODIE, A. L. R. C. OBB et M. A. A. Z. WIENIECKI. 2006, «Direct hydraulic resistance in two Angiosperm tree species», *Ame*, vol. 93, nº 7, doi :10.3732/ajb.93.7.993, p. 993–1000. 33, 36

COUSSOT, P. 2000, «Scaling approach of the convective drying of a porous medium», *The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems*, vol. 15, nº 3, doi :10.1007/s100510051160, p. 557–566, ISSN 1434-6028. URL http://www.springerlink.com/index/GK7WG2WJWY2RXJ0T.pdf. 15, 16, 17, 21

COUSSOT, P., C. GAUTHIER et F. BERTRAND. 1999, «Mouvements capillaires durant le séchage d'une pâte granulaire», *Physicochimie*, vol. 327, p. 1101–1106. 18

DANG-VU, T. et J. HUPKA. 2005, «Characterization of porous materials by capillary rise method», *Physicochemical Problems of Mineral Processing*, vol. 39, p. 47–65, ISSN 1643-1049. 13

DE MEIJER, M., S. HAEMERS, W. COBBEN et H. MILITZ. 2000, «Surface energy determinations of wood : Comparison of methods and wood species», *Langmuir*, vol. 16, nº 24, doi :10.1021/la001080n, p. 9352–9359, ISSN 07437463. 42, 43

DELKER, T., D. B. PENGRA et P.-Z. WONG. 1996, «Interface Pinning and the Dynamics of Capillary Rise in Porous Media», *Physical Review Letters*, vol. 76, nº 16, doi : 10.1103/PhysRevLett.76.2902, p. 2902–2905, ISSN 0031-9007. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.76.2902. 11

DESMARAIS, G., M. S. GILANI, P. VONTOBEL, J. CARMELIET et D. DEROME. 2016, «Transport of Polar and Nonpolar Liquids in Softwood Imaged by Neutron Radiography», *Transport in Porous Media*, vol. 113, nº 2, doi :10.1007/s11242-016-0700-4, p. 383–404, ISSN 15731634. URL "http://dx.doi.org/10.1007/s11242-016-0700-4. 47

DULLIEN, F. 1992, *Porous media - Fluid transport and pore structure*, second edi éd., Academic Press, London. 45

DVINSKIKH, S. V., M. HENRIKSSON, A. L. MENDICINO, S. FORTINO et T. TORATTI. 2011, «NMR imaging study and multi-Fickian numerical simulation of moisture transfer in Norway spruce samples», *Engineering Structures*, vol. 33, nº 11, doi :10.1016/j.engstruct.2011.04.011, p. 3079–3086, ISSN 01410296. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.engstruct.2011.04.011. 49

FAURE, P. et P. COUSSOT. 2010, «Drying of a model soil», *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, vol. 82, nº 3, doi :10.1103/PhysRevE.82.036303, p. 6303, ISSN 15393755. 16

GEZICI-KOÇ, Ö., S. J. F. ERICH, H. P. HUININK, L. G. J. VAN DER VEN et O. C. G. ADAN. 2017, «Bound and free water distribution in wood during water uptake and drying as measured by 1D magnetic resonance imaging», *Cellulose*, vol. 24, doi :10.1007/s10570-016-1173-x, p. 535–553, ISSN 0969-0239. URL http://link.springer.com/10.1007/s10570-016-1173-x. 49, 50, 52

HAMEURY, S. et M. STERLEY. 2006, «Magnetic resonance imaging of moisture distribution in Pinus sylvestris L. exposed to daily indoor relative humidity fluctuations», *Wood Material Science and Engineering*, vol. 1, nº December 2013, doi :10.1080/17480270601150578, p. 116–126, ISSN 1748-0272. URL http://dx.doi.org/10.1080/17480270601150578. 52

HARRINGTON, J. 1999, *Communication personnelle*, Copyright University of Canterbury. 24

HOLBROOK, N. M., M. A. ZWIENIECKI et P. J. MELCHER. 2002, «The dynamics of "dead wood" : maintenance of water transport through plant stems.», *Integrative and comparative biology*, vol. 42, nº 3, doi :10.1093/icb/42.3.492, p. 492–496, ISSN 1540-7063. 25

HSE, C.-Y. et M.-L. KUO. 1988, «Influence of extractives on wood gluing and finishing - a review», *Forest Products Journal*, vol. 38, nº 1, p. 52–56, ISSN 00157473. URL http://www.treesearch.fs.fed.us/pubs/8068. 42

JANSEN, S., B. CHOAT et A. PLETSERS. 2009, «Morphological variation of intervessel pit membranes and implications to xylem function in angiosperms», *American Journal of Botany*, vol. 96, nº 2, doi :10.3732/ajb.0800248, p. 409–419, ISSN 00029122. 35

JOHANSSON, J. et G. KIFETEW. 2010, «CT-scanning and modelling of the capillary water uptake in aspen, oak and pine», *European Journal of Wood and Wood Products*, vol. 68, nº 1, doi :10.1007/s00107-009-0359-4, p. 77–85, ISSN 00183768. 47

JOHANSSON, J. et J. G. SALIN. 2011, «Application of percolation modelling on end-grain water absorption in aspen (Populus tremula L.)», *Wood Material Science and Engineering*, vol. 6, nº 3, doi :10.1080/17480272.2010.537768, p. 112–118, ISSN 1748-0272. URL http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/17480272.2010.537768. 45, 46

KALOGIANNI, E. P., T. SAVOPOULOS, T. D. KARAPANTSIOS et S. N. RAPHAELIDES. 2004, «A dynamic wicking technique for determining the effective pore radius of pregelatinized starch sheets», *Colloids and Surfaces B : Biointerfaces*, vol. 35, nº 3-4, doi :10.1016/j.colsurfb.2004.03.008, p. 159–167, ISSN 09277765. 13

KEITA, E., S. A. KOEHLER, P. FAURE, D. A. WEITZ et P. COUSSOT. 2016, «Drying kinetics driven by the shape of the air/water interface in a capillary channel», *European Physical Journal E*, vol. 39, nº 2, doi :10.1140/epje/i2016-16023-8, p. 1–10, ISSN 1292895X. 22, 23

KIM, H. K., J. PARK et I. HWANG. 2014, «Investigating water transport through the xylem network in vascular plants», *Journal of Experimental Botany*, vol. 65, nº 7, doi :10.1093/jxb/eru075, p. 1895–1904, ISSN 14602431. 36

KIRDPONPATTARA, S., M. PHISALAPHONG et B. M. Z. NEWBY. 2013, «Applicability of Washburn capillary rise for determining contact angles of powders/porous materials», *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 397, doi :10.1016/j.jcis.2013.01.033, p. 169–176, ISSN 00219797. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.jcis.2013.01.033. 13

KOHONEN, M. M. 2006, «Engineered wettability in tree capillaries», *Langmuir*, vol. 22, nº 7, doi :10.1021/la052861x, p. 3148–3153, ISSN 07437463. 43

KOHONEN, M. M. et Å. HELLAND. 2009, «On the Function of Wall Sculpturing in Xylem Conduits», *Journal of Bionic Engineering*, vol. 6, nº 4, doi :10.1016/S1672-6529(08)60131-6, p. 324–329, ISSN 16726529. URL http://dx.doi.org/10.1016/S1672-6529(08)60131-6. 34

KRABBENHOFT, K. et L. DAMKILDE. 2004, «Double porosity models for the description of water infiltration in wood», *Wood Science and Technology*, vol. 38, nº 8, doi :10.1007/s00226-004-0253-5, p. 641–659, ISSN 00437719. 38, 47, 48

KUCEROVA, I. 2012, «Methods to measure the penetration of consolidant solutions into 'dry' wood», *Journal of Cultural Heritage*, vol. 13, nº 3 SUPPL., doi :10.1016/j.culher.2012.04.012, p. 191–195, ISSN 12962074. 43, 44

LABAJOS-BRONCANO, L., M. GONZÁLEZ-MARTÍN, J. BRUQUE, C. GONZÁLEZ-GARCÍA et B. JA&NACUTE;CZUK. 1999, «On the Use of Washburn's Equation in the Analysis of Weight-Time Measurements Obtained from Imbibition Experiments.», *Journal of colloid and interface science*, vol. 219, nº 2, doi :10.1006/jcis.1999.6492, p. 275–281, ISSN 1095-7103. URL http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/10534386. 14

LAGO, M. et M. ARAUJO. 2001, «Capillary rise in porous media», *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 289, nº 1-2, doi :10.1016/S0378-4371(00)00460-X, p. 1–17, ISSN 03784371. 14

LEBOUCHER, B. «Fabriquer en bois massif : anticiper les variations», *Le Bouvet, N °167*, p. 21–33. 40

LEE, S., T. F. SHUPET, L. H. GROOM et C. Y. HSE. 2007, «Wetting Beha Viors of Phenol- and Urea-Formaldehyde», *Wood and fiber science*, vol. 39, nº 3, p. 482–492. 42

LEHMANN, P. et D. OR. 2013, «Effect of wetness patchiness on evaporation dynamics from drying porous surfaces», *Water Resources Research*, vol. 49, nº 12, doi :10.1002/2013WR013737, p. 8250–8262, ISSN 00431397. 15

LIESE, W. et J. BAUCH. 1967, «On the closure of bordered pits in conifers», *Wood Science and Technology*, vol. 1, nº 1, doi :10.1007/BF00592252, p. 1–13, ISSN 00437719. 30

LU, J. Z. et Q. WU. 2006, «Surface Characterization of Chemically Modified Wood», *Wood and Fiber Science*, vol. 38, nº 3, p. 497–511, ISSN 07356161. 42

MANTANIS, G. I. et R. A. YOUNG. 1997, «Wetting of wood», *Wood Science and Technology*, vol. 31, nº 5, doi :10.1007/s002260050041, p. 339–353, ISSN 0043-7719. 42

MCCULLY, M., M. CANNY, A. BAKER et C. MILLER. 2014, «Some properties of the walls of metaxylem vessels of maize roots, including tests of the wettability of their lumenal wall surfaces», *Annals of Botany*, vol. 113, nº 6, doi :10.1093/aob/mcu020, p. 977–989, ISSN 10958290. 43

MENON, R. S., A. L. MACKAY, J. R. HAILEY, M. BLOOM, A. E. BURGESS et J. S. SWANSON. 1987, «An NMR determination of the physiological water distribution in wood during drying», *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 33, nº 4, doi :10.1002/app.1987.070330408, p. 1141–1155, ISSN 10974628. URL http://dx.doi.org/10.1002/app.1987.070330408. 39

NAVI, P. et F. HEGER. 2005, *Comportement thermo-hydromécanique du bois : applications technologiques et dans les structures*, Matériaux (Lausanne), Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, ISBN 9782880746209. URL https://books.google.fr/books?id=1WWJAW0cWSwC. 42

NGUYEN, T. et W. E. JOHNS. 1979, «The effects of aging and extraction on the surface free energy of douglas fir and redwood», *Wood Science and Technology*, vol. 13, nº 1, doi :10.1007/BF00350173, p. 29–40, ISSN 1432-5225. URL https://doi.org/10.1007/BF00350173. 42

NYLUND, J., K. SUNDBERG, Q. SHEN et J. B. ROSENHOLM. 1998, «Determination of surface energy and wettability of wood resins», *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 133, nº 3, doi :10.1016/S0927-7757(97)00209-4, p. 261–268, ISSN 09277757. 42

PERALTA, P. 1995, «Sorption of Moisture by Wood Within A Limited Range of Relative Humidities», *Wood and Fiber Science*, vol. 27, nº 1, p. 13–21, ISSN 0735-6161. URL http://swst.metapress.com/content/H23757304562311J. 42

PERRÉ, P. 2000, *Fundamental aspects of fluid migration in beech*, 2nd Workshop "Quality Drying of Hardwood", COST Action E15, Sopron, Hungary. 45, 46, 47, 50

PERRÉ, P. et É. BADEL. 2006, «De l'eau dans l'arbre à l'eau dans le matériau bois : une introduction», *Rev. For. Fr. LVIII*, vol. 4, p. 305–315. 39, 41

PIAO, C., J. E. WINANDY et T. F. SHUPE. 2010, «FROM HYDROPHILICITY TO HYDROPHOBICITY : A CRITICAL REVIEW : PART I . WETTABILITY AND SURFACE BEHAVIOR», *Wood And Fiber*, vol. 42, nº 4, p. 490–510, ISSN 07356161. URL http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-78649771403{&}partnerID=40{&}md5=474d82aa779fbd989d4f0f21913848ac. 42

PLOURDE, F. et M. PRAT. 2003, «Pore network simulations of drying of capillary porous media. Influence of thermal gradients», *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 46, p. 1293–1307. URL https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00131119. 16

PLUMB, O. A., G. A. SPOLEK et B. A. OLMSTEAD. 1985, «Heat and mass transfer in wood during drying», *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 28, nº 9, doi :10.1016/0017-9310(85)90141-3, p. 1669–1678, ISSN 00179310. 51

POPOVICH, L. L., D. L. FEKE et I. MANAS-ZLOCZOWER. 1999, «Influence of physical and interfacial characteristics on the wetting and spreading of fluids on powders», *Powder Technology*, vol. 104, nº 1, doi :10.1016/S0032-5910(99)00030-3, p. 68–74, ISSN 00325910. 14

PRESTIDGE, C. A. et G. TSATOUHAS. 2000, «Wettability studies of morphine sulfate powders», *International Journal of Pharmaceutics*, vol. 198, nº 2, doi :10.1016/S0378-5173(00)00341-0, p. 201–212, ISSN 03785173. 14

RÉMOND, R., P. PERRÉ et E. MOUGEL. 2005, «Using the concept of thin dry layer to explain the evolution of thickness, temperature, and moisture content during convective drying of Norway spruce boards», *Drying technology*, vol. 23, nº 1, doi :10.1081/DRT-200047883, p. 249–271, ISSN 0737-3937. 52

ROSENKILDE, A., J. P. GORCE et A. BARRY. 2004, «Measurement of moisture content profiles during drying of scots pine using magnetic resonance imaging», *Holzforschung*, vol. 58, nº 2, doi :10.1515/HF.2004.020, p. 138–142, ISSN 00183830. 52

SALIN, J.-G. 2008, «Modelling water absorption in wood», *Wood Material Science & Engineering*, vol. 3, nº 3-4, doi :10.1080/17480270902781576, p. 102–108, ISSN 1748-0272. URL http://dx.doi.org/10.1080/17480270902781576. 46

SANDBERG, K. et J. G. SALIN. 2012, «Liquid water absorption in dried Norway spruce timber measured with CT scanning and viewed as a percolation process», *Wood Science and Technology*, vol. 46, nº 1-3, doi :10.1007/s00226-010-0371-1, p. 207–219, ISSN 00437719. 46

SCHNEIDER, H., N. WISTUBA, H.-J. WAGNER, F. THURMER et ZIMMERMANN.U. 2000, «Water rise kinetics in refilling xylem after desiccation in a resurrection plant», *New Phytologist*, vol. 148, p. 221–238. 43

SCHOCH, W., I. HELLER, F. SCHWEINGRUBER et F. KIENAST. 2004, «Wood anatomy of central European Species», URL www.woodanatomy.ch. 26

SCHULTE, P. J. et A. L. CASTLE. 1993, «Water Flow Through Vessel Perforation Plates–A Fluid Mechanical Approach», *J. Exp. Bot.*, vol. 44, nº 7, doi :10.1093/jxb/44.7.1135, p. 1135–1142. URL http://jxb.oxfordjournals.org/cgi/content/abstract/44/7/1135. 33, 50

SCHULTE, P. J. et A. C. GIBSON. 1988, «Hydraulic conductance and tracheid anatomy in six species of extant seed plants», *Canadian Journal of Botany*, vol. 66, doi :https://doi.org/10.1139/b88-153, p. 1073–1079. 36

SCHWEINGRUBER, F. 1978, *Anatomie europäischer Hölzer*, Verlag Paul Haupt, Bern und Stuttgart. 31

SEDIGHI-GILANI, M., M. GRIFFA, D. MANNES, E. LEHMANN, J. CARMELIET et D. DEROME. 2012, «Visualization and quantification of liquid water transport in softwood by means of neutron radiography», *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 55, nº 21-22, doi :10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.06.045, p. 6211–6221, ISSN 00179310. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.06.045. 47

SEDIGHI-GILANI, M., P. VONTOBEL, E. LEHMANN, J. CARMELIET et D. DEROME. 2014, «Liquid uptake in Scots pine sapwood and heartwood visualized and quantified by neutron radiography», *Materials and Structures*, vol. 47, nº 6, doi :10.1617/s11527-013-0136-z, p. 1097–1097, ISSN 1359-5997. URL http://link.springer.com/10.1617/s11527-013-0136-z. 45, 47

SEGERHOLM, I. et J. CLAESSON. 2008, «Unexpected experimental results for capillary suction in wood : Analysis on the fibre level», *Wood Material Science and Engineering*, vol. 3, nº 3-4, doi :10.1080/17480270902909466, p. 109–118, ISSN 1748-0272. URL http://dx.doi.org/10.1080/17480270902909466. 44

SHAHIDZADEH-BONN, N., A. AZOUNI et P. COUSSOT. 2007, «Effect of wetting properties on the kinetics of drying of porous media», *Journal of Physics Condensed Matter*, vol. 19, nº 11, doi :10.1088/0953-8984/19/11/112101, ISSN 09538984. 18, 19

SHAHRAEENI, E., P. LEHMANN et D. OR. 2012, «Coupling of evaporative fluxes from drying porous surfaces with air boundary layer : Characteristics of evaporation from discrete pores», *Water Resources Research*, vol. 48, nº 9, doi :10.1029/2012WR011857, p. 1–15, ISSN 00431397. 15

SIAU, J. 1984, *Transport process in wood*, Springer-Verlag, New York, ISBN 978-3-642-69213-0. 30, 31, 39, 41, 45

SIEBOLD, A., M. NARDIN, J. SCHULTZ, A. WALLISER et M. OPPLIGER. 2000, «Effect of dynamic contact angle on capillary rise phenomena», *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 161, nº 1, doi :10.1016/S0927-7757(99)00327-1, p. 81–87, ISSN 09277757. 13

SIEBOLD, A., A. WALLISER, M. NARDIN, M. OPPLIGER et J. SCHULTZ. 1997, «Capillary Rise for Thermodynamic Characterization of Solid Particle Surface», *Journal of colloid and interface science*, vol. 186, nº 1, doi :10.1006/jcis.1996.4640, p. 60–70, ISSN 1095-7103. URL http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/9056302. 14

SIMPSON, L. A. et A. F. M. BARTON. 1991, «Determination of the Fiber Saturation Point in Whole Wood Using Differential Scanning Calorimetry», *Wood Science and Technology*, vol. 25, nº 4, p. 301–308. 39

SPERRY, J. S. et U. G. HACKE. 2004, «Analysis of circular bordered pit function I. Angiosperm vessels with homogenous pit membranes», *American Journal of Botany*, vol. 91, nº 3, doi :10.3732/ajb.91.3.369, p. 369–385, ISSN 00029122. 36

SPERRY, J. S., U. G. HACKE et J. K. WHEELER. 2005, «Comparative analysis of end wall resistivity in xylem conduits», *Plant, Cell and Environment*, vol. 28, nº 4, doi :10.1111/j.1365-3040.2005.01287.x, p. 456–465, ISSN 01407791. 33

SPOLEK, G. A. et O. A. PLUMB. 1981, «Wood Science and Technology Capillary Pressure in Softwoods», *Wood Science and Technology*, vol. 15, p. 189–199. 51

STONE, J. et A. SCALLAN. 1965, «Effect of component removal upon the porous structure of the cell wall of wood», *Journal of Polymer Science Part C : Polymer Symposia*, vol. 11, nº 1, doi :10.1002/polc.5070110104, p. 13–25. URL https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/polc.5070110104. 39

SUBRAHMANYAM, T. V., C. A. PRESTIDGE et J. RALSTON. 1996, «Contact angle and surface analysis studies of sphalerite particles», *Minerals Engineering*, vol. 9, nº 7, doi :10.1016/0892-6875(96)00064-7, p. 727–741, ISSN 08926875. 13

SUZUKI, M. et S. MAEDA. 1968, «On the mechanism of drying of granular beds : Mass Transfer from Discontinuous Source», *Journal of Chemical Engineering of Japan*, vol. 1, nº 1, doi :10.1252/jcej.1.26, p. 26–31, ISSN 00219592. 15

TELKKI, V. V., M. YLINIEMI et J. JOKISAARI. 2013, «Moisture in softwoods : Fiber saturation point, hydroxyl site content, and the amount of micropores as determined from NMR relaxation time distributions», *Holzforschung*, vol. 67, nº 3, doi :10.1515/hf-2012-0057, p. 291–300, ISSN 00183830. 39

TERZIEV, N. 1994, *Infuence of Kiln and Air Drying on Redistribution of Low-Molecular Sugars and Nitrogenous Compounds in Scots Pine (Pinus sylvestris L.) and Consequences for Mould Susceptibility.*, thèse de doctorat, Swedish University of Agriculture Science. 52

THIERY, J. 2016, *Water Transfer in Sub-micron Porous Media during Drying and Imbibition*, thèse de doctorat, Université Paris-Est. 16

THIERY, J., S. RODTS, D. A. WEITZ et P. COUSSOT. 2017, «Drying regimes in homogeneous porous media from macro- to nanoscale», *Phys. Rev. Fluids*, vol. 2, doi : 10.1103/PhysRevFluids.2.074201, p. 074 201. URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevFluids.2.074201. 20, 21

TIEMANN, H. 1906, *Effect of moisture upon the strength and stiffness of wood*, Washington, Gov't print. off. 39

TROUY, M.-C. 2015, *Anatomie du bois*, quae éd., Synthèses. 28, 29, 31, 32, 36

VAN OSS, C. J., R. F. GIESE, Z. LI, K. MURPHY, J. NORRIS, M. K. CHAUDHURY et R. J. GOOD. 1992, «Determination of contact angles and pore sizes of porous media by column and thin layer wicking», *Journal of Adhesion Science and Technology*, vol. 6, nº 4, doi :10.1163/156856192X00755, p. 413–428, ISSN 15685616. 13

WÅLINDER, M. E. P. et G. STRÖM. 2001, «Measurement of wood wettability by the Wilhelmy method. Part 2. Determination of apparent contact angles», *Holzforschung*, vol. 55, nº 1, doi :10.1515/HF.2001.006, p. 33–41, ISSN 00183830. 42

WASHBURN, E. W. 1921, «The dynamics of capillary flow», *Physical Review*, vol. 17, nº 3, doi :10.1103/PhysRev.17.273, p. 273–283, ISSN 0031899X. 11

WHEELER, E. A., P. BAAS et S. RODGERS. 2007, «Variations in dicot wood anatomy : A global analysis based on the insidewood database», *IAWA Journal*, vol. 28, nº 3, doi :10.1163/22941932-90001638, p. 229–258, ISSN 09281541. 33

WIBERG, P. 1995, «Moisture distribution changes during drying», *Holz Roh Werkst*, vol. 53, nº 1, p. 402. URL http://dx.doi.org/10.1007/BF02716473. 52

WIBERG, P. 1996, «Colour changes of scots pine and norway spruce», *Holz als Roh- und Werkstoff*, vol. 54, nº 5, doi :10.1007/s001070050199, p. 349–354, ISSN 1436-736X. URL https://doi.org/10.1007/s001070050199. 52

WIBERG, P. et T. J. MOREN. 1999, «Moisture flux determination in wood during drying above fibre saturation point using CT-scanning and digital image processing», *Holz Als Roh-Und Werkstoff*, vol. 57, nº 2, doi :10.1007/s001070050029, p. 137–144, ISSN 0018-3768. 52

WOLFROM, R., S. CHANDER et R. HOGG. 2002, «Evaluation of capillary rise methods for determining wettability of powders», *Minerals and Metallurgical Processing*, vol. 19, p. 198–202. 14

ZWIENIECKI, M. A. et N. M. HOLBROOK. 2000, «Bordered Pit Structure and Vessel Wall Surface Properties. Implications for Embolism Repair», *Plant Physiology*, vol. 123, n° 3, doi :10.1104/pp.123.3.1015, p. 1015–1020, ISSN 0032-0889. URL http://www.plantphysiol.org/lookup/doi/10.1104/pp.123.3.1015. 43

ZWIENIECKI, M. A., P. J. MELCHER et N. M. HOLBROOK. 2001, «Hydraulic properties of individual xylem vessels of Fraxinus americana.», *Journal of experimental botany*, vol. 52, n° 355, doi :10.1093/jexbot/52.355.257, p. 257–264, ISSN 0022-0957. 33, 50

Chapitre 2

Matériels et Méthodes

Sommaire

2.1 Matériaux **65**
2.1.1 Propriétés des échantillons de bois 65
2.1.1.1 Les essences étudiées 65
2.1.1.2 Prélèvement des échantillons de peuplier 65
2.1.1.3 Conditionnement des échantillons 67
2.1.1.4 Observation de la structure interne des échantillons 68
2.1.1.5 Quantification de la structure poreuse des échantillons . . 71
2.1.2 Matières premières 71
2.2 Mesures macroscopiques **75**
2.2.1 Tests d'imbibition 75
2.2.1.1 Mesures par pesées 75
2.2.1.2 Mesures de déformations 77
2.2.1.3 Observations de l'imbibition de gouttes 78
2.2.2 Séchage 78
2.3 Résonance Magnétique Nucléaire du proton **80**
2.3.1 Principe de la RMN 82
2.3.1.1 Temps de relaxation et taille de pores 84
2.3.1.2 FID 85
2.3.2 Séquences RMN 86
2.3.2.1 Inversion-Récupération 86
2.3.2.2 Spin-Écho et CPMG 86
2.3.2.3 Séquence 2D 86
2.3.3 Imagerie par Résonance Magnétique 88
2.3.3.1 Principe 88
2.3.3.2 1D profils 88
2.3.3.3 Images 90
2.3.3.4 Traitement de signal 92
2.3.4 Conditions expérimentales 92
2.3.4.1 Appareils 92

2.3.4.2 Installations expérimentales 94
2.3.5 Exemple : effets de bords étudiés par IRM 95
2.4 Microtomographie aux rayons X 99
2.4.1 Principes 99
2.4.2 Protocoles expérimentaux 101
2.5 Les hydrogels - un matériau modèle 104
2.5.1 Préparation des hydrogels 104
2.5.2 Tests d'imbibition 106
2.6 Références 106

Dans ce chapitre, nous décrivons les matériaux utilisés ainsi que les protocoles expérimentaux mis en place, avant de détailler les principes des techniques de mesure employées au cours de ce travail (IRM et microtomographie aux rayons X).

2.1 Matériaux

2.1.1 Propriétés des échantillons de bois

2.1.1.1 Les essences étudiées

Nous avons vu au chapitre 1 que les résineux sont par rapport aux feuillus des bois « simples » en termes de composition (90% de trachéides) et d'organisation des cellules [CARLQUIST, 2012; TROUY, 2015]. Cependant, grâce à la séparation des fonctions de soutien mécanique et de conduction de la sève, les feuillus disposent d'un système hydraulique plus simple et plus efficace. Nous pouvons en effet comparer leur structure à un ensemble de tubes parallèles. C'est pourquoi dans cette étude nous choisissons de nous focaliser sur les feuillus.

Nous avons choisi d'étudier 4 essences de feuillus : le peuplier et le charme (feuillu à pores diffus), le chêne et le frêne (feuillu à zone initiale poreuse) (voir Section.1.2.2.2). Du fait de circonstances particulières, les tests d'imbibition macroscopiques et les mesures par l'IRM sont principalement effectués avec des échantillons de peuplier, tandis que les observations par tomographie aux rayons X sont principalement réalisées sur le charme.

2.1.1.2 Prélèvement des échantillons de peuplier

La grume de peuplier a été abattue à ras du sol, entre février et mars 2014, dans la commune de Marigny en Orxois en France. Un plot a été récupéré puis découpé en trois planches centrales (écorce comprise) mesurant environ 1,1 mètre de haut (voir Fig.2.1). Les planches sont stockées à l'air ambiant du laboratoire , à environ 50% HR et 20°C.

Le bois est un matériau naturel fortement hétérogène. Afin de localiser chaque échantillon par rapport à l'arbre, nous avons défini un plan de découpe pour les échantillons de peuplier (voir Fig.2.2). Les pavés de dimension $4(R) \times 1,6(T) \times 10(L)\ cm^3$ pour les tests d'imbibition sont prélevés dans le duramen, à partir du 12ème cerne par rapport à la moelle. La dénomination des échantillons est définie ainsi :

— Première lettre : de A à F. Cette lettre précise la position par rapport au sol, voir Fig.2.1 et Fig.2.2.

— Deuxième chiffre : 1 ou 2. Il correspond aux deux faces de la planche. Comme la planche a une épaisseur de 3,6 cm (T), deux pavés dont l'épaisseur en T est d'environ 1,8 cm sont prélevés dans la direction tangentielle.

— Troisième lettre : N ou S. La moelle de la grume est légèrement décentrée, cette lettre correspond donc à la position par rapport à la moelle. Du côté N : les cernes sont plus fins ($5 \backsim 6mm$). Du côté S : les cernes sont plus larges ($6 \backsim 8mm$).

— Dernier chiffre : le numéro d'échantillon de la découpe.

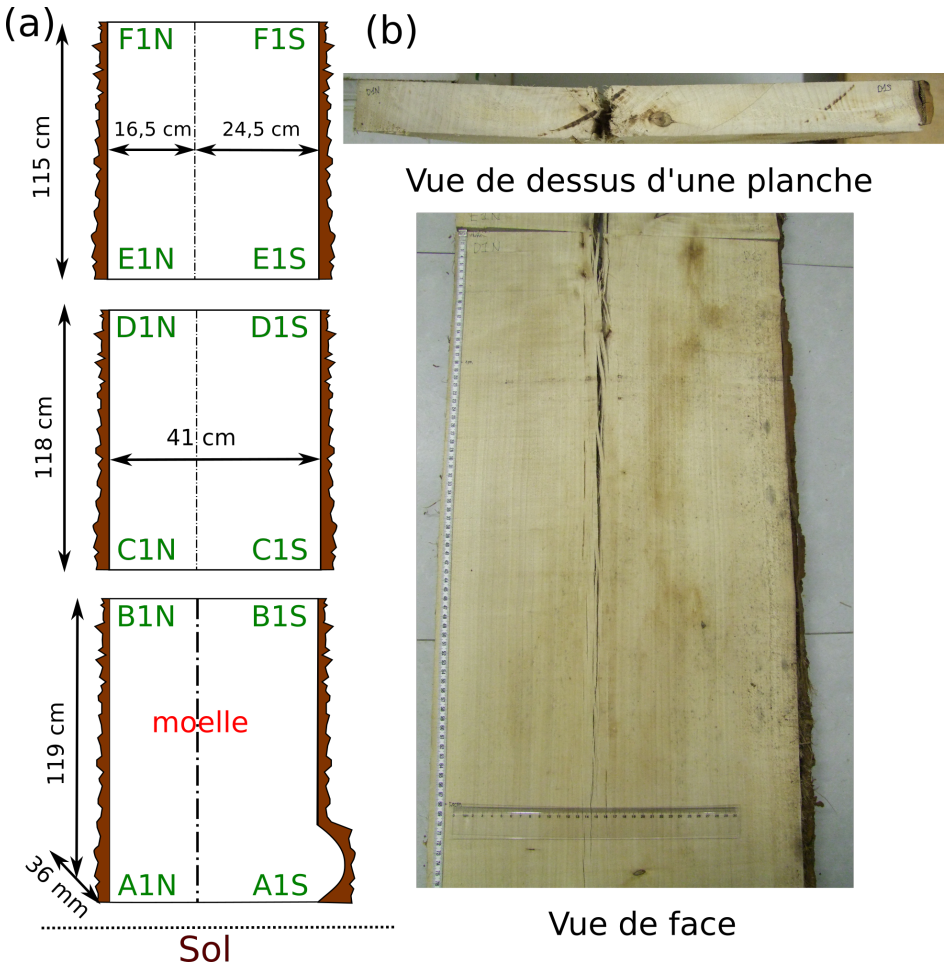


FIGURE 2.1 – (a) Illustration des dimensions des trois planches de peuplier. (b) Photos d'une planche.

Entre chaque pavé dans la direction longitudinale, des morceaux de 4(R)×3.6(T)×1(L) cm^3 sont prélevés (par exemple : D1N1, D1N5, D1N9 sur la Fig.2.2) pour donner les informations sur la largeur de cerne, la structure, etc. Des cubes de 1 cm^3 sont aussi prélevés à partir de ces morceaux.

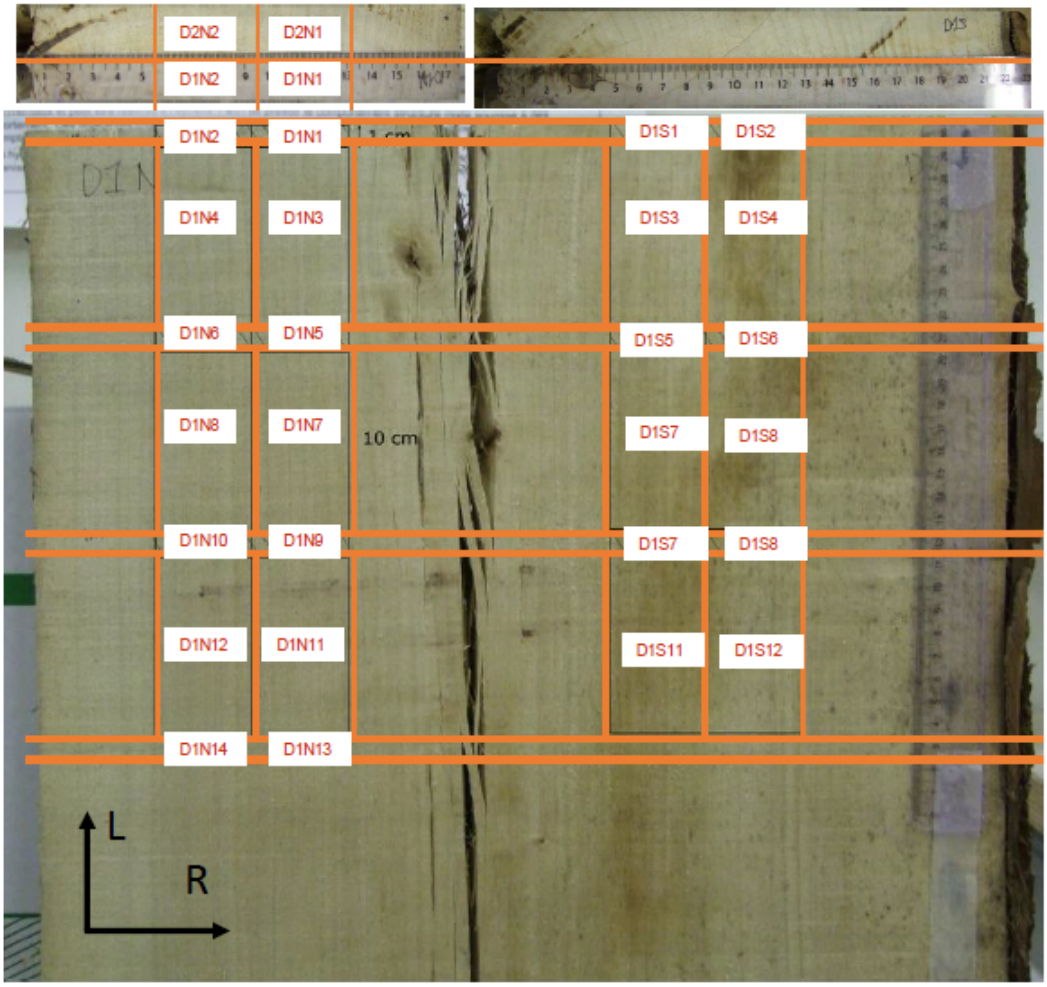


FIGURE 2.2 – Plan de découpe pour les échantillons de peuplier.

2.1.1.3 Conditionnement des échantillons

Une fois découpés, les échantillons sont conditionnés dans une salle contrôlée en température à 20 ± 2°C dans un dessiccateur contenant une solution sursaturée de nitrate de magnésium, qui maintient une humidité relative de 55 ± 1%. Afin de vérifier que les échantillons ont atteint leur équilibre avant les expériences, leur masse est pesée régulièrement jusqu'à ce qu'elle devienne apparemment stable pendant 5 jours.

A 55% HR, la densité des échantillons est $0,445 \pm 0,008$ g/cm^3, mesurée sur 8 échantillons cubiques de 1 cm^3, dont 4 prélevés du côté N et 4 du côté S. La teneur en eau à 55% HR calculée selon l'Eq.1.26 dans le chapitre 1 est $9,03 \pm 0,06$% (pour la masse à l'état anhydre, voir Section.2.1.2).

2.1.1.4 Observation de la structure interne des échantillons

Des observations internes sont réalisées afin de mieux connaitre la structure des échantillons. La Fig.2.3 montre la structure générale du charme et du peuplier. Les structure des deux espèces présentent une composition similaire : les grands tubes conducteurs sont les vaisseaux, qui sont entourés par les petites cellules (fibres). Quelques rayons ligneux sont également visibles sur la Fig.2.3.

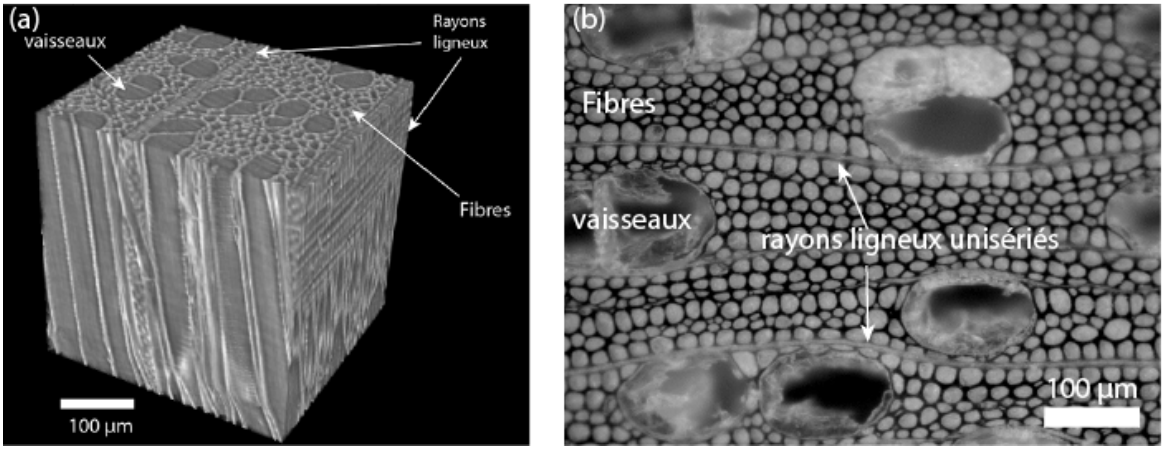


FIGURE 2.3 – Structure typique des feuillus étudiés observée par différentes techniques. **(a)** Image tomographique aux rayons X d'un échantillon de charme. **(b)** Image au MO (microscopie optique) dans le plan transversal d'un échantillon de peuplier.

Protocole de préparation des échantillons La caractérisation de la structure poreuse des échantillons est effectuée soit à l'aide d'un microscope optique Axio Scope A1 -Zeiss à réflexion au moyen du logiciel AxioVision Rel.4.8 (grossissement x20), soit avec une loupe binoculaire avec un grossissement x5. Avant d'être observés au microscope, nous effectuons le polissage à sec sur la surface transversale d'échantillons. Pour cela, nous utilisons des papiers de verre, dont la taille de grains varie de P200 à P4000 (le chiffre signifie le nombre de grains par cm^2).

Les images au MEB (microscopie électronique à balayage) ont été réalisées à l'état sec par Sabine Caré (Laboratoire Navier).

À l'intérieur des vaisseaux Nous avons vu dans la section 1.2.2.2 que les vaisseaux peuvent présenter des structures très variées entre espèces. De plus, comme les vaisseaux constituent le système conducteur du bois, il est essentiel d'effectuer les observations au sein des vaisseaux pour comprendre leurs propriétés de transport.

Les images au MEB présentées sur la Fig.2.4 nous permettent d'observer plus finement la morphologie au sein des vaisseaux. Dans un premier temps, on peut remarquer que le peuplier et le charme ont tous des perforations simples. Cela signifie que les éléments de vaisseaux (plusieurs centaines de µm) sont interconnectés entre eux par des ouvertures circulaires aussi larges que leur section pour former un long vaisseau. Les per-

forations simples fournissent alors très peu de résistances à la conduction d'eau. En revanche, elles contribuent localement à des irrégularités sur les parois.

En outre, comme les vaisseaux sont souvent accolés (les vaisseaux partagent des parois communes, voir Fig.2.3), on peut observer sur les parois communes des ponctuations intervasculaires. Sur la Fig.2.4 un grand nombre de ponctuations intervasculaires sont visibles à la fois pour le peuplier et pour le charme. Le vaisseau montré sur la Fig.2.4.c a une distribution homogène de ponctuations le long de la paroi commune, ce qui signifie l'existence d'un autre vaisseau au-dessous du plan d'observation.

Enfin on peut remarquer que le peuplier a des parois lisses tandis que le charme a des épaississements spiralés.

Dans ces travaux de thèse, nous considérons en général les vaisseaux des deux espèces comme des tuyaux cylindriques.

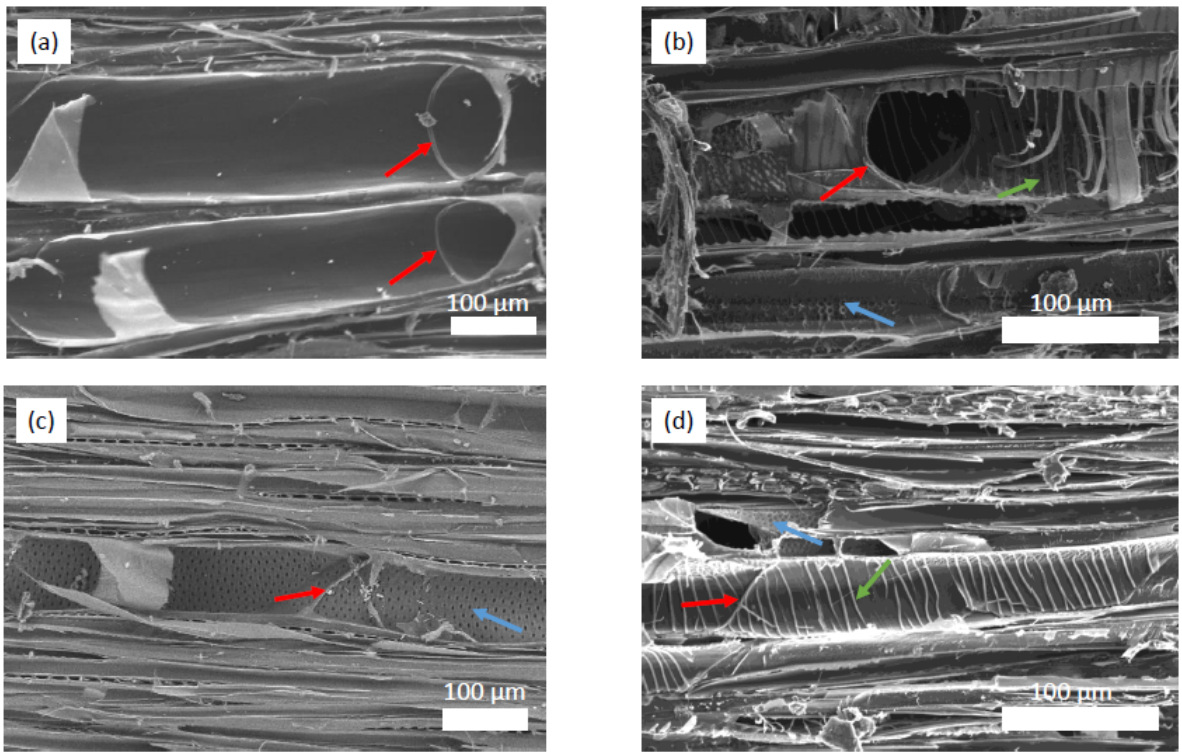


FIGURE 2.4 – Images au MEB montrant la structure au sein des vaisseaux : dans le plan RL du peuplier **(a)** et du charme **(b)** ; dans le plan TL du peuplier **(c)** et du charme **(d)**. Flèches rouges : perforations simples. Flèches vertes : épaississements spiralés. Flèches bleues : ponctuations intervasculaires. Images réalisées par Sabine Caré.

À l'intérieur des fibres La Fig.2.5 montre la structure intérieure des fibres du peuplier et du charme. On peut d'abord remarquer que les fibres ont tous une forme effilée. Ensuite, nous pouvons observer quelques ponctuations d'une taille d'environ 1-2 μm indiquées par les flèches dans le plan RL. Peu d'informations sur le fonctionnement des ponctuations dans les fibres sont disponibles dans la littérature, mais on peut en déduire à partir de ces images que le transfert de fluide entre vaisseaux et fibres est très faible, voire négligeable par rapport aux flux longitudinaux.

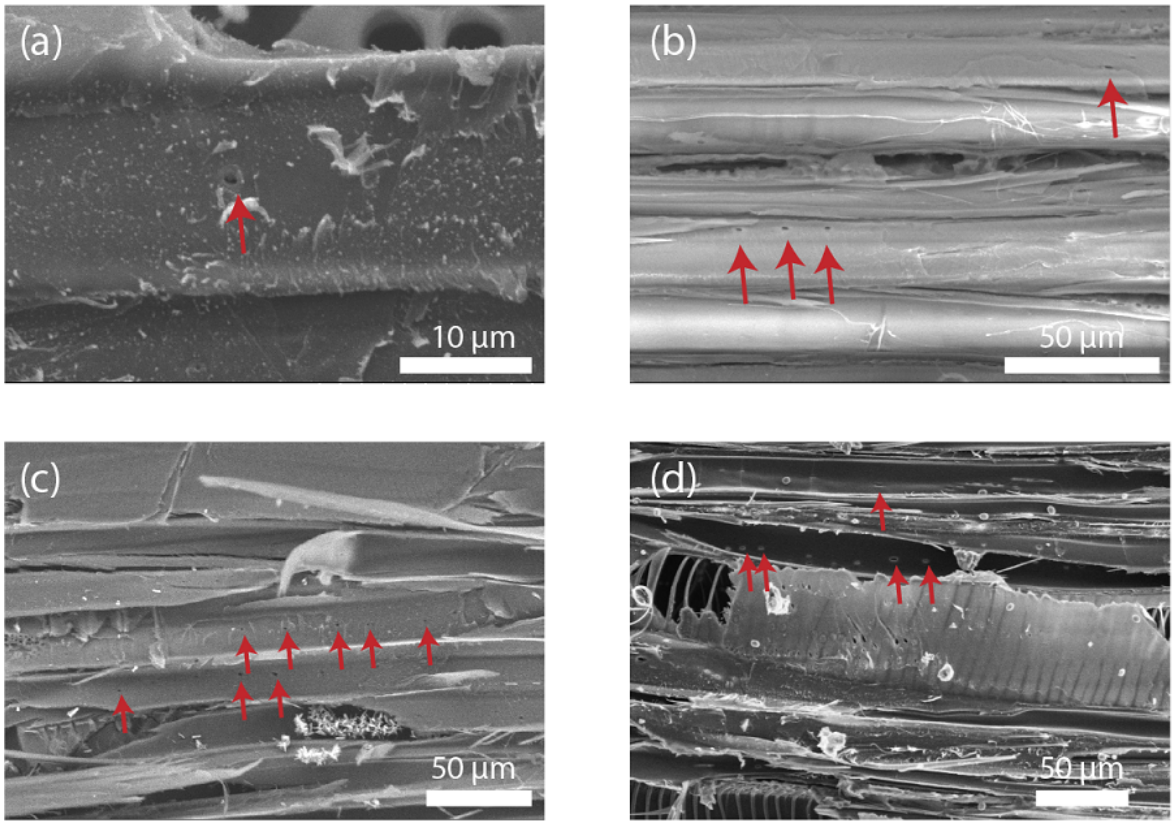


FIGURE 2.5 – Images au MEB montrant des ponctuations (indiquées par flèches rouges) dans les fibres, dans le plan RL : **(a)** et **(c)**, peuplier ; **(b)** et **(d)**, charme. Images réalisées par Sabine Caré.

2.1.1.5 Quantification de la structure poreuse des échantillons

Les images obtenues à l'aide de la microscopie optique sont analysées pour obtenir des informations concernant la taille des lumens. Le traitement d'images est réalisé avec le logiciel ImageJ [SCHNEIDER et collab., 2012]. Le processus de traitement consiste d'abord à binariser l'image importée avec un seuillage, puis à l'analyser avec la fonction "**Analyze Particles**". La Fig.2.6 montre deux images acquises sur des échantillons de peuplier. Sur les images, on observe clairement deux populations de pores : les grands pores de taille autour de 100 µm (les vaisseaux), et les petits pores de taille environ 20 µm (les fibres). Puis avec la fonction "**Analyze Particles**" d'ImageJ, on peut déterminer la surface, le diamètre, le périmètre, etc des particules identifiées (voir Fig.2.6). En première approximation, on néglige le volume des rayons ligneux dans l'estimation de la porosité des échantillons (voir Fig.2.6, images en bas).

L'aire de la surface des lumens est directement mesuré à l'aide d'ImageJ. On constate que les vaisseaux et les fibres n'ont pas une section parfaitement circulaire (voir Fig.2.6). On définit alors un rayon caractéristique des lumens R_{eff}, définie par l'équation 2.1 :

$$R_{eff} = \sqrt{A/\pi} \tag{2.1}$$

où R_{eff} est le rayon effectif du lumen, et A l'aire de la surface du lumen.

Les distributions de tailles des lumens pour le peuplier et pour le charme sont présentées sur la Fig.2.7 et la Fig.2.8. Pour le peuplier, le rayon moyen des fibres est de 8 µm et celui des vaisseaux est de 55 µm. Pour le charme, on obtient 6 µm pour le rayon des fibres et 30 µm pour le rayon des vaisseaux. Ces résultats sont cohérents avec la base de données IAWA [WHEELER, 2011], et avec les observations par microtomographie aux rayons X (voir Section.2.4.2). Un récapitulatif de la contribution des éléments structuraux à la porosité est présenté dans Tableau.2.1.

	vaisseaux (%)	fibres (%)	porosité (%)	paroi cellulaire (%)
Peuplier	$43,5 \pm 0,2$	$26,4 \pm 0,6$	$70,3 \pm 0,4$	$30 \pm 0,4$
Charme	$29,5 \pm 0,4$	$21,2 \pm 0,9$	$50,7 \pm 1,3$	$49,3 \pm 1,3$

TABLEAU 2.1 – Porosité du peuplier et du charme, présentée en % volumique.

2.1.2 Matières premières

Fluides Dans cette étude, nous avons étudié les propriétés d'imbibition du bois avec différents fluides : un fluide polaire, l'eau déminéralisée du laboratoire, et deux fluides non-polaires : quatre huiles de silicone et du dodécane.

Les huiles de silicone 47 proviennent du *Chimie-Plus Laboratoires*. La structure chimique de ces huiles, ou polyméthylsiloxanes, est montrée sur la Fig. 2.9, où n signifie le degré de polymérisation. La nomenclature pour les huiles 47 est la suivante : le nombre 47 à la référence des huiles ; la lettre V, signifiant la viscosité de l'huile ; et enfin le nombre

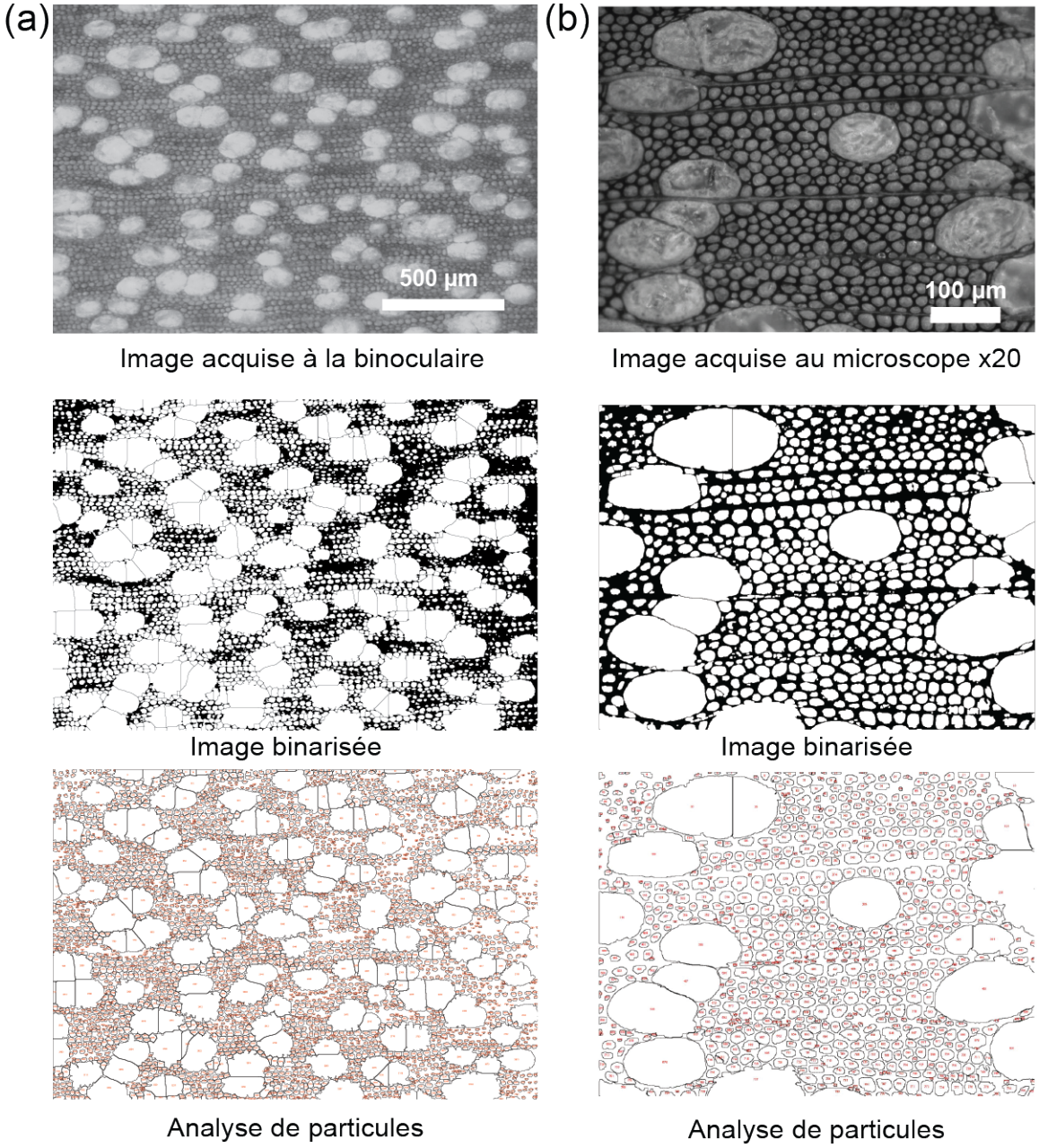


FIGURE 2.6 – Exemples d'images acquises sur deux échantillons de peuplier et leur traitement. (a) Grossissement x5 à la binoculaire. (b) Grossissement x20 au microscope optique Axio.

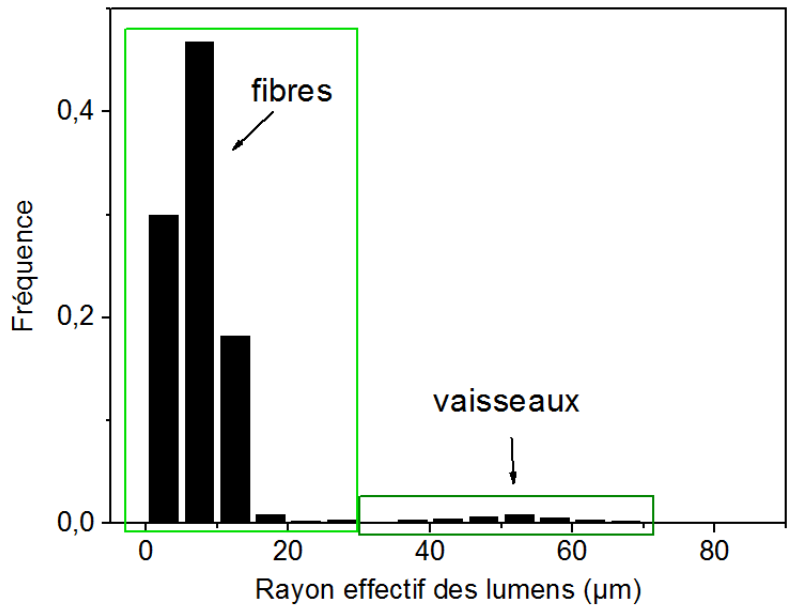


FIGURE 2.7 – Distribution de tailles des lumens du peuplier, intervalle 5 µm.

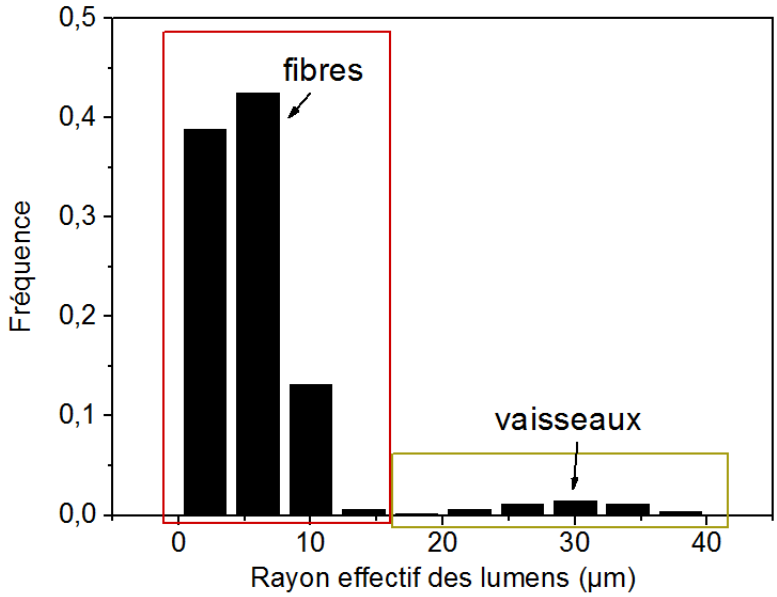


FIGURE 2.8 – Distribution de tailles des lumens du charme, intervalle 4 µm.

indiquant la viscosité en $mPa.s$ à 25°C. Par exemple, l'huile 47V20 est une huile de silicone de viscosité de 20 $mPa.s$. Les propriétés physiques des huiles de silicone étudiées se trouvent dans le tableau 2.2.

Le dodécane est un alcane linéaire de formule $C_{12}H_{26}$. Ses propriétés physiques sont également montrées dans Tableau.2.2.

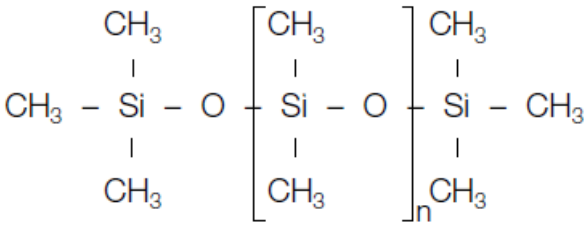


FIGURE 2.9 – Structure moléculaire du polymethylsiloxane.

Liquides	eau	47V20	47V125	47V350	47V500	dodécane
Viscosité en $mPa.s$ à 25°C	1	20	125	350	500	1,324
Densité en g/cm^3 à 25°C	1	0,950	1,065	0,970	0,970	0,746
Tension superficielle en mN/m	70,2	20,6	24,5	21,1	21,0	25,35

TABLEAU 2.2 – Propriétés physiques des liquides étudiées.

Pour examiner l'impact de la tension superficielle de l'eau, nous avons préparé une solution aqueuse de bétaïne de cocamidopropyle. La bétaïne de cocamidopropyle (voir Fig.2.10) est un tensioactif dérivé de l'huile de noix de coco et couramment utilisé dans des produits nettoyants. La solution est préparée à la concentration micellaire critique de la bétaïne (1 g/L). À cette concentration, la tension superficielle de la solution est de 30 mN/m.

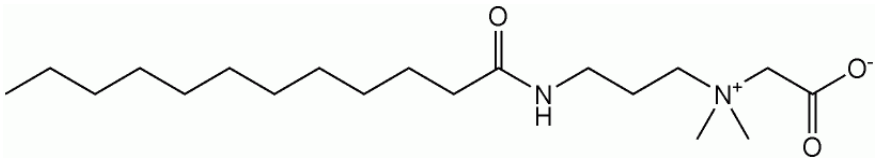


FIGURE 2.10 – Structure moléculaire de la bétaïne de cocamidopropyle.

Solutions salines et humidités relatives Des solutions salines sursaturées sont préparées afin d'obtenir différentes humidités relatives (voir Tableau.2.3). Pour préparer des solutions salines sursaturées, on dissout d'abord la quantité maximale de sel dans de l'eau déminéralisée en tenant compte de la solubilité de chaque sel. Puis un excès de sel est ajouté dans la solution saturée afin d'avoir une solution sursaturée. Une fois préparée, la solution est ajoutée dans un dessiccateur avec un thermohygromètre *Testo 174H* qui est

capable d'afficher et d'enregistrer les données de l'humidité relative dans l'air avec une précision de ±3% HR. Les échantillons sont conditionnés dans les dessiccateurs une fois l'humidité relative stabilisée.

HR (20°C, en %)	composant chimique
55	Nitrate de magnésium($Mg(NO_3)_2$)
85	Chloride de potassium (KCl)
97	Sulfate de potassium (K_2SO_4)

TABLEAU 2.3 – Les sels ou le composant chimique et leurs humidités relatives associées à 20°C.

On considère que la masse anhydre est obtenue en mettant l'échantillon dans une étuve de laboratoire à 60°C pendant plusieurs jours. La masse est pesée régulièrement. On considère que le bois ne contient plus d'eau lorsque sa masse ne diminue plus pendant au moins deux jours. La masse anhydre obtenue de cette façon est utilisée pour différentes types d'expériences et les résultats obtenus sont cohérents. Cela suggère que même si une petite fraction d'eau pourrait rester dans l'échantillon à 60°C, elle induirait une erreur de l'estimation de la teneur en eau qui est négligeable devant l'incertitude de nos mesures.

2.2 Mesures macroscopiques

2.2.1 Tests d'imbibition

2.2.1.1 Mesures par pesées

Montage Le montage expérimental pour les tests d'imbibition est présenté sur la Fig.2.11. Nous perçons un petit trou en haut au milieu de l'échantillon, afin d'accrocher l'échantillon à une balance par le dessous à l'aide d'un fil souple. La balance est capable de prendre des mesures avec un intervalle minimal d'une seconde. Elle est connectée à un ordinateur pour l'enregistrement des données. Le bas de l'échantillon est mis en contact avec du liquide contenu dans une boîte de Pétri, dont la section transversale est beaucoup plus grande que celle de l'échantillon. Les expériences peuvent durer jusqu'à trois jours. Pour limiter au minimum l'effet de la baisse du niveau d'eau due à l'évaporation, un couvercle avec une ouverture au centre est utilisé, pour laisser l'échantillon entrer en contact avec de l'eau sans toucher le couvercle. Les quatre faces verticales sont protégées avec une peinture pour bois imperméable à l'eau liquide (Nom commercial : $Aqua-Stop^{®}$). L'impact de l'utilisation de la peinture sur les effets de bords est discuté dans la section 2.3.5.

L'imbibition commence lorsque le bas de l'échantillon entre en contact avec le liquide. Nous suivons alors l'évolution temporelle de la masse de l'échantillon. L'acquisition des données débute juste avant la mise en contact de l'échantillon avec du liquide.

Correction de mesure de masse Le poids mesuré par la balance associé à une masse $m_{balance}$ est une contribution de plusieurs forces : la masse initiale de l'échantillon de

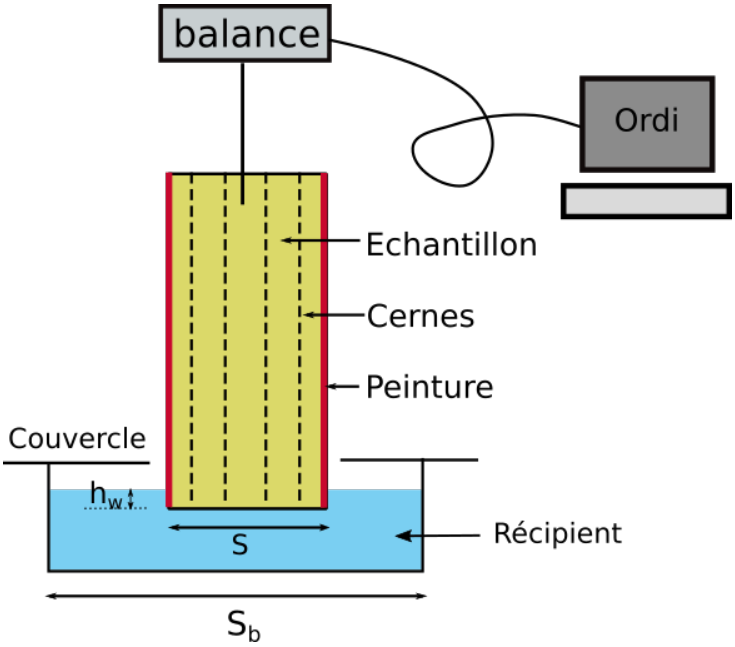


FIGURE 2.11 – Schéma du montage du test d'imbibition pour les échantillons de bois.

bois m_{ech}, la masse du liquide imbibé m_L, la force d'Archimède associée à une masse m_A et la force capillaire exercée par la tension de surface du liquide dans le bain m_{cap} :

$$m_{balance} = m_{ech} + m_L + m_A + m_{cap} \tag{2.2}$$

Regardons maintenant chaque composant dans l'Eq.2.2. Ce qui nous intéresse est seulement l'évolution temporelle de la masse du liquide imbibé m_L. La masse de l'échantillon m_{ech} est une constante. Étant donné que le bas de l'échantillon reste toujours immergé dans le liquide pendant les expériences, la force capillaire exercée sur l'échantillon est aussi constante. A cause de l'absorption de liquide, le niveau de liquide dans le récipient et la profondeur h_w immergée (voir Fig.2.11) diminue en fonction du temps. Par conséquent, la poussée d'Archimède m_A n'est pas constante pendant l'expérience. On obtient donc la relation : $\Delta m_{balance} = \Delta m_L + \Delta m_A$. Nous allons maintenant corriger l'erreur de mesure liée à Δm_A.

La variation de la poussée d'Archimède Δm_A par rapport à son état initial est donnée par $-\rho S \Delta h_w$, où ρ est la densité du liquide et S la surface de section transversale ((voir Fig.2.11). On peut écrire maintenant :

$$\Delta m_{balance} = \Delta m_L - \rho S \Delta h_w \tag{2.3}$$

Nous pouvons aussi écrire la relation entre la masse de liquide absorbé et la variation de h_w dans le bain de liquide :

$$\Delta m_L = \rho (S_b - S) \Delta h_w \tag{2.4}$$

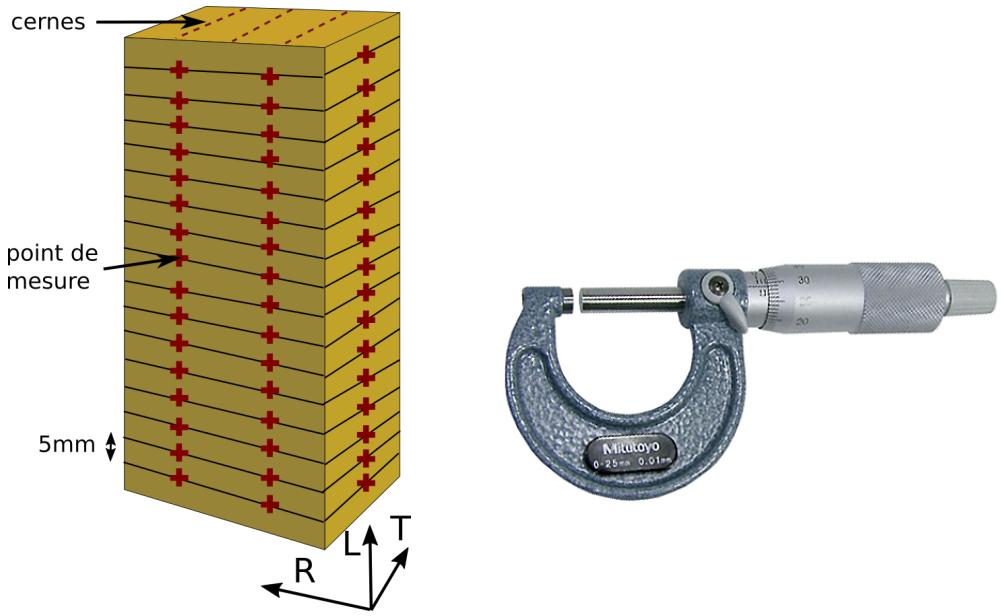
où S_b est la surface du bain de liquide (voir Fig.2.11). En combinant l'Eq.2.3 et l'Eq.2.4, nous obtenons la valeur de la masse de liquide absorbé :

$$m_L = m_{balance} \times (1 - S/S_b) \tag{2.5}$$

Étant donné que la valeur de S de l'échantillon de bois est 4(R) × 1,6(T) cm^2, tandis que le diamètre du récipient est de 18,3 cm, nous obtenons alors l'erreur induite par la poussée d'Archimède, soit de 2,4% .

2.2.1.2 Mesures de déformations

Pour les tests d'imbibition, les mesures de déformations sont réalisées sur les échantillons mis en contact avec de l'eau dans un bécher mais sans être accrochés à la balance. Les déformations dans la direction R et T sont mesurées tous les 5 mm selon la direction L, qui est aussi la direction d'imbibition (voir Fig.2.12.a). Les déformations en T sont mesurées sur deux différents points à la même hauteur pour donner une valeur moyenne afin d'éviter les variations liées à l'hétérogénéité entre les cernes. Les déformations en R sont aussi mesurées deux fois au même endroit. Ces mesures sont réalisées à l'aide de deux micromètres *Mitutoyo* avec une précision de 0,01 mm, dont un ayant la capacité de mesurer 0-25 mm selon T, et l'autre de 25-50 mm selon R (voir Fig.2.12.b).



(a) (b)

FIGURE 2.12 – (a) Schéma de mesures de déformations. (b) Photo du micromètre *Mitutoyo*, 0-25 mm.

Comme expliqué dans la section 2.3.5, pour les tests d'imbibition nous avons appliqué de la peinture sur les bords latéraux d'échantillons pour éviter les effets de bords. De ce fait, afin de déterminer les déformations en présence de peinture, nous avons mesuré les dimensions initiales avant et après l'application de peinture. Notons que la dimension selon R à l'état initial R_0, devient $R'_0 = R_0 + 2e$ après l'application de la peinture, où e est l'épaisseur de la couche de peinture. Après un temps d'imbibition t, l'échantillon gonfle, ayant une nouvelle dimension R dans la direction radiale. Nous supposons que la peinture est élastique, et l'augmentation de la surface due au gonflement de l'échantillon

est négligeable, on peut alors supposer que la peinture garde une épaisseur constante. Notons que l'épaisseur de la couche de peinture mesurée est environ $0,2\ mm$. La déformation en R est calculée ainsi :

$$déformation\ en\ \mathrm{R} = (\mathrm{R}' - \mathrm{R}'_0)/\mathrm{R}_0 \times 100\% \tag{2.6}$$

De la même manière, nous avons :

$$déformation\ en\ \mathrm{T} = (\mathrm{T}' - \mathrm{T}'_0)/\mathrm{T}_0 \times 100\% \tag{2.7}$$

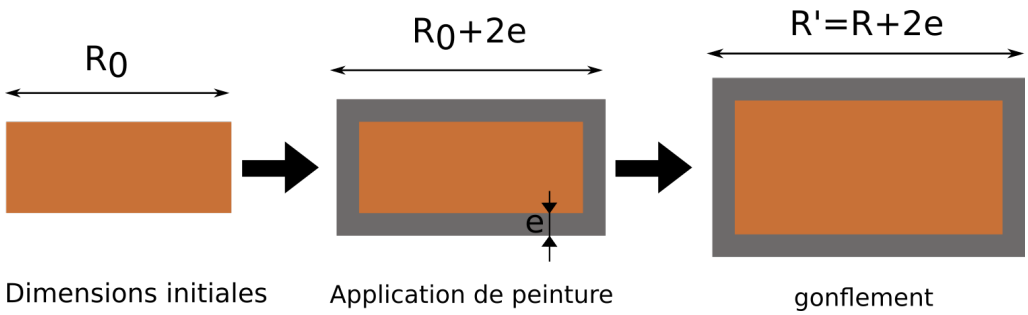


FIGURE 2.13 – Mesures des déformations avec l'application de peinture, coupe transverse.

2.2.1.3 Observations de l'imbibition de gouttes

Pour avoir des informations concernant l'imbibition sur des temps courts, nous étudions l'imbibition de gouttes dans le bois par observation directe. Cette méthode consiste à mesurer l'évolution de la géométrie d'une goutte de liquide déposée sur la surface transversale d'échantillons de bois. La surface est d'abord polie avec un papier de verre P400 afin de réduire la rugosité de la surface avant le dépôt de goutte. La goutte est déposée sur l'échantillon à l'aide d'une micropipette, puis l'évolution de la forme de la goutte est enregistrée avec une caméra à 30 fps (*frame per second*, nombre d'images par seconde).

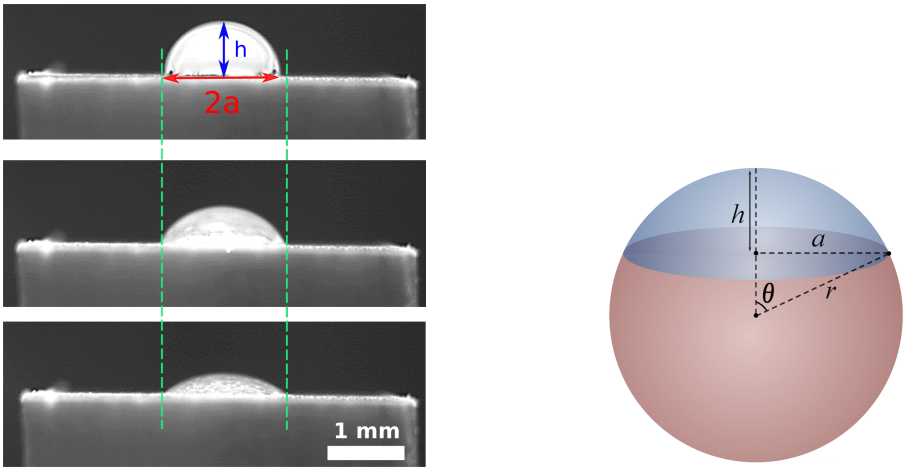
Comme montré sur la Fig.2.14, après la mise en contact avec l'échantillon, la goutte s'étend rapidement jusqu'à la stabilisation de sa surface de contact, c'est-à-dire que la ligne de contact n'évolue pratiquement plus pendant la pénétration dans l'échantillon. On considère que la forme des gouttes est représentée par une calotte sphérique. En mesurant la hauteur h et le diamètre $2a$ de la calotte, nous obtenons le volume restant de la goutte Ω à chaque instant :

$$\Omega = \frac{\pi h^2 (3a - h)}{3} \tag{2.8}$$

Grâce à ImageJ, nous sommes capables de suivre l'évolution temporelle du volume de la goutte. Le volume de liquide absorbé par unité de surface s'écrit alors $(\Omega_0 - \Omega)/\pi a_0^2$, où l'indice $_0$ signifie l'état initial.

2.2.2 Séchage

Les expériences macroscopiques de séchage consistent à sécher des échantillons de bois humides en soufflant de l'air séché à débit contrôlé. Avant le séchage, l'échantillon



(a) (b)

FIGURE 2.14 – (a) Images successives montrant la pénétration d'une goutte d'eau dans un échantillon de peuplier. Les lignes verticales sont un guide pour l'œil. (b) Calotte sphérique.

est imbibé dans l'eau sous vide pour avoir une valeur de MC entre 150 ~ 180 %. Puis, seule une surface de l'échantillon est exposée au flux d'air. Grâce à l'équipe technique du laboratoire, nous avons conçu le dispositif expérimental montré sur la Fig.2.15. L'air comprimé est d'abord séché par un sécheur d'air (filtre et sécheur Dommick Hunter) à moins de 1% HR, avant d'arriver à un débitmètre qui fixe le débit d'air à la sortie. Puis le courant d'air est injecté dans un canal rectangulaire d'épaisseur 5 mm, avec une ouverture où une surface de l'échantillon humide peut entrer en contact avec le flux d'air sec. La vitesse d'air dans le canal est environ 1 m/s. Les surfaces latérales et le fond de l'échantillon sont protégés de parafilms et l'échantillon est mis dans un support d'échantillon (voir Fig.2.15). Nous mesurons l'évolution temporelle de la masse de l'échantillon à l'aide d'une balance connectée à un ordinateur pour l'enregistrement des données. L'intervalle de mesures est d'abord toutes les minutes la première heure puis toutes les 5 minutes. À la fin du séchage, l'échantillon est mis à l'étuve à 60°C pendant au moins 2 jours pour obtenir sa masse anhydre.

Notons que la dynamique de séchage est influencée par les conditions extérieures. Cependant dans le cadre de cette thèse nous ne cherchons par à étudier l'influence des conditions extérieures. La température, HR, le débit d'air sont contrôlées pour rester constantes pendant différentes expériences.

Connaissant la masse de l'échantillon à chaque instant $m(t)$ et sa masse anhydre m_{bois}, nous pouvons étudier l'évolution de la teneur en eau dans l'échantillon pendant le séchage :

$$\mathrm{MC}(t) = \frac{m(t) - m_{bois}}{m_{bois}} \times 100\% \tag{2.9}$$

Nous pouvons également calculer le taux de séchage, c'est-à-dire la dérivée de la courbe de masse dm/dt à l'instant $t_i + 1/2t_\Delta$:

$$dm/dt = \frac{m(t_i + t_\Delta) - m(t_i)}{t_\Delta} \tag{2.10}$$

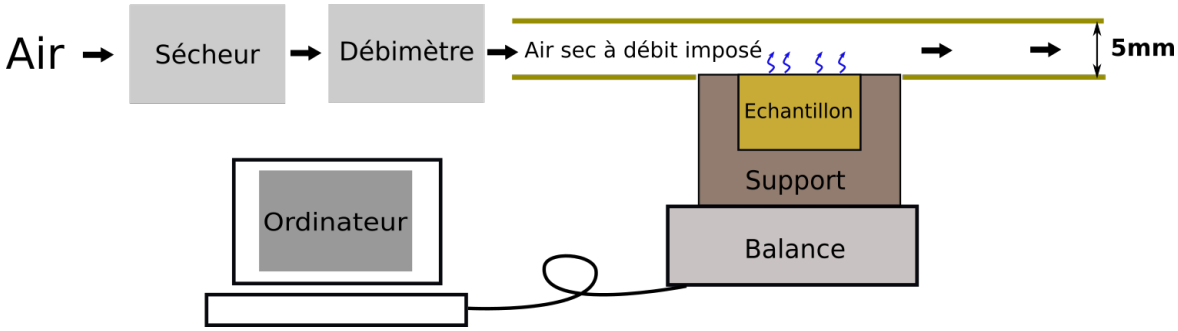


FIGURE 2.15 – Dispositif de séchage pour les expériences macroscopiques

où t_Δ est l'intervalle de temps de mesure.

Le taux de séchage obtenu avec l'Eq.2.10 reste assez bruité, d'une part à cause du flux d'air qui induit des oscillations de mesures de masse en imposant des forces instables sur la surface de l'échantillon, et d'autre part, la variation de la masse de l'échantillon devient très faible à la fin de l'expérience. De ce fait, pour les courbes de taux de séchage nous présentons les valeurs moyennes entre plusieurs points avoisinants, comme montré sur la Fig.2.16.

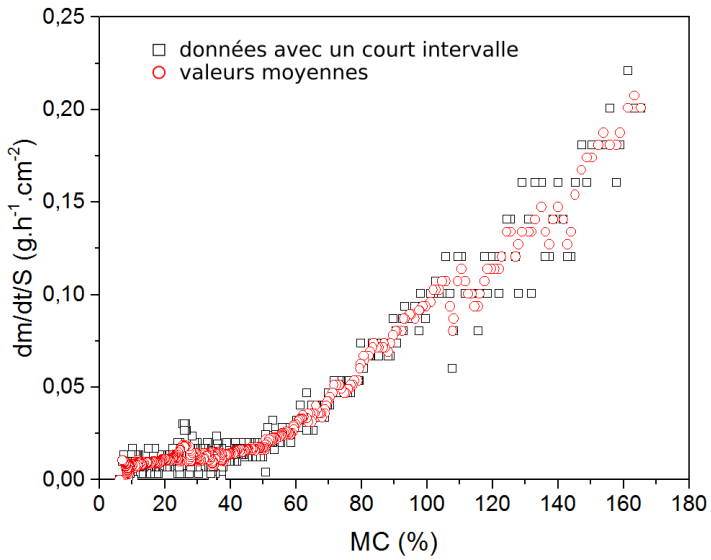


FIGURE 2.16 – Courbe de taux de séchage obtenue avec la méthode de dérivation.

2.3 Résonance Magnétique Nucléaire du proton

10 ans après la naissance de la spectroscopie RMN, cette technique a été appliquée pour la première fois à des milieux poreux [PURCELL et collab., 1946]. Depuis, de nombreuses études ont montré que la RMN est une technique bien adaptée au matériau bois, non seulement pour étudier la distribution d'eau dans sa structure complexe [ALMEIDA

et collab., 2007; HAMEURY et STERLEY, 2006; MENON et collab., 1989, 1987; TELKKI, 2012; XU et collab., 1996] mais aussi pour identifier et caractériser les différents types d'eau dans le bois[ARAUJO et collab., 1992; BONNET et collab., 2017; COX et collab., 2010; LABBÉ, 2002; PASSARINI et collab., 2014].

Les recherches sur les interactions entre l'eau et le bois par relaxométrie RMN se sont surtout accélérées avec les travaux de MENON et collab. [1989, 1987]. Selon lui [MENON et collab., 1987], le signal RMN de l'eau dans le cèdre (une essence de résineux) a en effet trois composantes : l'eau avec la valeur de T_2 la plus courte de quelques ms est l'eau liée dans les parois cellulaires; l'eau avec T_2 intermédiaire à environ 50 ms est l'eau liquide dans le lumen du bois final et des rayons ligneux; enfin l'eau qui relaxe le plus lentement avec le T_2 supérieur à 100 ms est située dans le lumen du bois initial. Puis en 1994, la même équipe de chercheurs [ARAUJO et collab., 1994] a étudié les interactions entre l'eau liée et le bois dans le domaine hygroscopique par relaxométrie T_2. LABBÉ et collab. [2006] ont proposé une nouvelle méthode de CPMG pour mesurer et quantifier la distribution d'eau dans le bois vert et présenté un modèle de calibration pour l'identification des composants en utilisant le programme CONTIN (disponible sur le web http ://s-provencher.com/pages/contin.shtml). A côté de ces méthodes classiques 1D de la distribution de temps de relaxation (T_1 ou T_2), COX et collab. [2010] ont réalisé des cartes 2D avec la corrélation de $T_1 - T_2$ qui permet d'identifier deux composants de l'eau liée ayant les mêmes valeurs de T_2 mais avec différentes valeurs de T_1. Cette méthode s'est avérée être applicable et quantifiable pour toute la gamme de MC, du domaine hygroscopique jusqu'au bois vert. Elle a été ensuite appliquée par BONNET et collab. [2017] pour étudier les différents comportements des deux composants de l'eau liée dans le bois initial et dans le bois final du Douglas.

Cependant, beaucoup d'études par RMN ont été faites sur les résineux qui ont une structure complètement différente de celle des feuillus. ALMEIDA et collab. [2007] ont néanmoins étudié les différents types d'eau dans trois essences de feuillus et l'impact de la structure anatomique du matériau sur la relation eau-bois. PASSARINI et collab. [2014] ont étudié la distribution de T_2 de l'eau liée dans le domaine hygroscopique pour deux essences tropicales de feuillu et une essence des régions tempérées.

L'utilisation de l'IRM dans le domaine de la médecine est peut-être l'application la plus connue de la RMN, mais MENON et collab. [1989] ont montré le potentiel de l'IRM pour mesurer la distribution spatiale de la teneur en eau dans le bois. DVINSKIKH et collab. [2011] ont étudié systématiquement la dynamique d'adsorption sur des échantillons exposés à différentes humidités relatives en mesurant la teneur en eau locale par IRM. Un modèle multi-Fickian qui décrit la diffusion de la vapeur d'eau, et la diffusion de l'eau liée dans les parois cellulaires dans le domaine hygroscopique a été proposé. Les travaux de ALMEIDA et collab. [2008] ont montré par IRM que pendant le séchage, le transport dans la direction longitudinale est plus important que dans la direction radiale et la tangentielle, et le démouillage commence de préférence dans le bois final. MEDER et collab. [2003] ont observé les transferts anisotropes de l'eau liée à travers des cernes pendant le séchage. Ils ont également montré que le temps de relaxation T_2 varie en fonction de l'orientation du plan transverse par rapport au champ magnétique. L'impact d'un traitement chimique

[MAZELA et collab., 2014] ou thermique [JAVED et collab., 2014; KEKKONEN et collab., 2014] sur l'absorption d'eau dans le bois traité a été aussi étudié par IRM. L'IRM a même été utilisée pour étudier les transports d'eau chez les plantes vivantes. Par exemple, WINDT et collab. [2006] ont étudié les transports d'eau dans le phloème et le xylème et obtenu les profils de la vitesse de l'écoulement de la sève au sein de quatre essences (peuplier, ricin, tomate et tabac) ; JONES et collab. [2012] ont utilisé un spectroscope RMN transportable pour des mesures de la distribution d'eau *in situ* sur un arbre vivant (*Prunus padus*).

Dans cette section, nous allons voir dans un premier temps, comment identifier les différents types d'eau dans les échantillons de peuplier par relaxométrie. Ensuite, en nous basant sur les valeurs de T_2 obtenues, nous développons une séquence d'IRM multi-échos pour obtenir les distributions spatiales et temporelles des teneurs en eau liée et en eau libre.

2.3.1 Principe de la RMN

Lorsqu'un proton tourne, il possède autour de lui un moment cinétique, ou "spin" aligné sur son axe de rotation. Le noyau d'hydrogène (^{1}H) constitué d'un unique proton, a un spin 1/2 et est associé à un moment magnétique $\vec{\mu}$. En absence d'un champ magnétique extérieur, les protons d'un échantillon sont orientés de façon aléatoire, induisant alors une aimantation globale (représentée par $\vec{M}$) nulle.

Une expérience de RMN consiste d'abord à placer un échantillon dans un champ magnétique extérieur $\vec{B}_0$ (ou appelé champ d'équilibre) selon l'axe z. Dans le champ magnétique $\vec{B}_0$, les protons dans l'échantillon vont se séparer en deux populations ayant différentes énergies : une parallèle à $\vec{B}_0$ (énergie basse) et une autre antiparallèle à $\vec{B}_0$ (énergie haute). Or, selon la distribution de Boltzmann, il y a un léger excès de protons parallèles dans le niveau de basse énergie. Ce sont ces protons en excès qui génèrent une aimantation $\vec{M}$ non nulle alignée sur l'axe z. Nous allons l'appeler aimantation longitudinale $\vec{M}_z$ (voir Fig.2.17). Les composantes transversales de $\vec{M}$ dans le plan xOy sont nulles.

Par ailleurs, il faut noter que les protons dans le champ magnétique $\vec{B}_0$ ne sont pas parfaitement alignés selon $\vec{B}_0$ mais ils tournent autour de lui à la fréquence de Lamor ω_0, définie par :

$$\omega_0 = \gamma B_0 \tag{2.11}$$

où γ est le rapport gyromagnétique, une valeur ne dépendant que des propriétés du noyau. Cette rotation autour d'un axe comme une toupie est définie comme *précession*. Dans le cas du proton, $\gamma_{^1\mathrm{H}} = 2,675 \times 10^8 rad/s/\mathrm{T}$.

Dans une expérience de RMN, nous allons ensuite perturber cet état équilibre par un autre champ magnétique tournant $\vec{B}_1$ (ou onde de radiofréquence (RF)) dans le plan xOy. Avec la nouvelle énergie apportée par $\vec{B}_1$, la composante longitudinale $\vec{M}_z$ diminue et la composante transversale $\vec{M}_{xy}$ augmente. On applique alors $\vec{B}_1$ pendant une certaine période de sorte que $\vec{M}$ soit basculé de 90°et se trouve dans le plan xOy. De la même

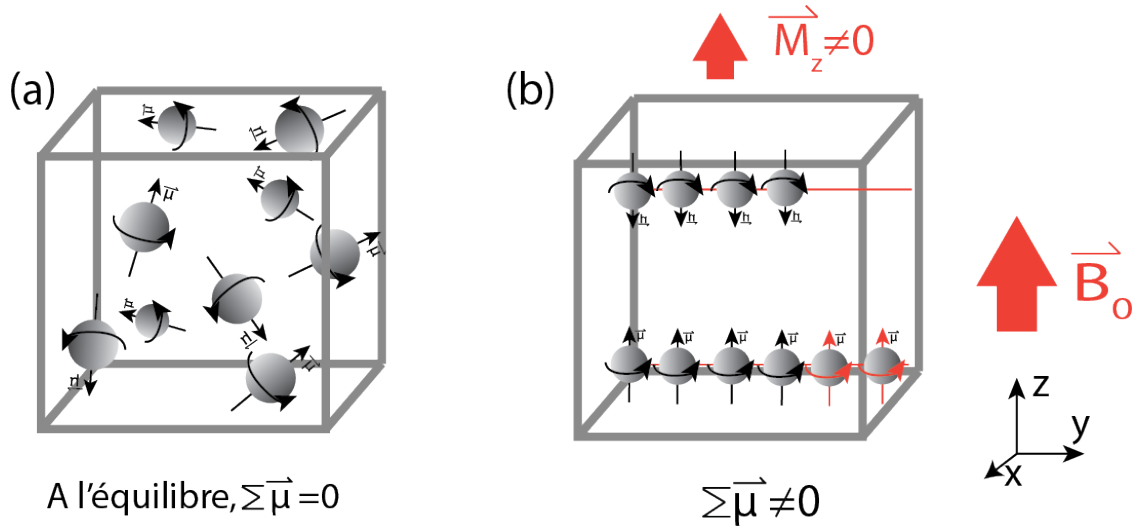


FIGURE 2.17 – Représentation de la présence des spins. (a) En l'absence d'un champ magnétique, les spins sont orientés aléatoirement, la somme de l'aimantation est alors nulle. (b) En appliquant un champ magnétique $\vec{B}_0$ sur l'axe z, les protons se séparent sur deux niveaux d'énergie : un léger excès de spins au niveau d'énergie le plus bas est à l'origine de l'aimantation$\vec{M}_z$ non nulle.

manière on peut aussi appliquer une impulsion de 180°, après laquelle $\vec{M}_z$ est inversé, devenant $-\vec{M}_z$ (voir Fig.2.18).

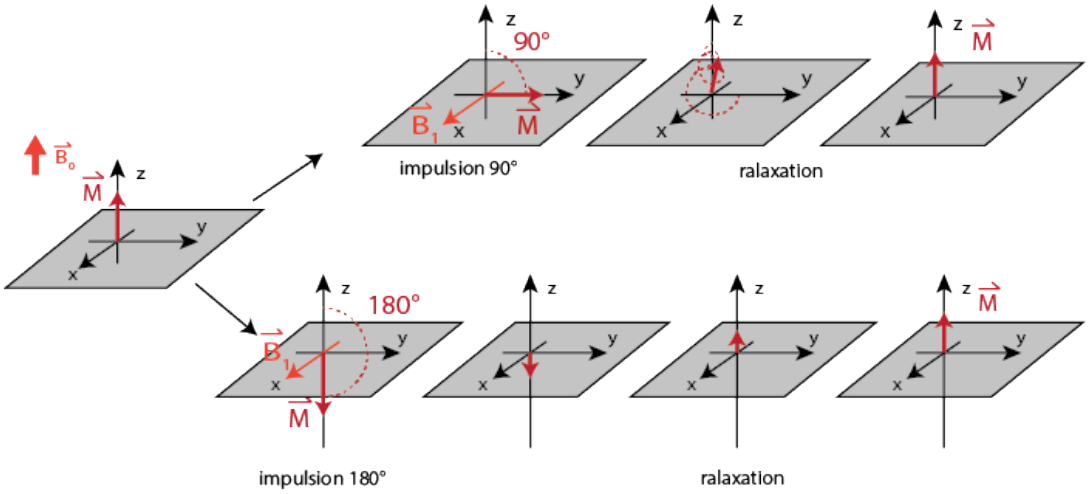


FIGURE 2.18 – Effet des impulsions RF sur l'aimantation $\vec{M}$ et les relaxations.

Une fois l'impulsion RF terminée, l'aimantation $\vec{M}$ va retourner à son état initial dans le champ $\vec{B}_0$: la composante longitudinale va retrouver progressivement sa valeur initiale (relaxation spin-réseau) tandis que la composante transversale va diminuer jusqu'à zéro (relaxation spin-spin). Les temps caractéristiques des relaxations longitudinale et transversale sont appelés T_1 et T_2 respectivement. Notons que T_2 est toujours plus court ou équivalent à T_1. Les amplitudes des composantes de l'aimantation $\vec{M}$ en fonction du temps s'écrivent comme :

$$M_z(t) = M_0 - 2M_0 e^{-t/T_1} \tag{2.12}$$

$$M_{xy}(t) = M_0 e^{-t/T_2} \tag{2.13}$$

L'évolution des amplitudes des composantes M_z et M_{xy} est montrée sur la Fig.2.19.

Par ailleurs, même si nous pouvons considérer à l'échelle macroscopique le champ $\vec{B}_0$ comme homogène, à l'échelle microscopique il y a toujours des inhomogénéités d'origine "instrumentale" ; en plus de cette inhomogénéité instrumentale, s'ajoute la présence de l'inhomogénéité d'origine moléculaire. Les deux effets induisent le déphasage des protons. En réalité la disparition de l'aimantation transversale est plus rapide que le temps T_2 théorique, on mesure alors T_2^* . Nous avons la relation $T_2^* \leq T_2 \leq T_1$.

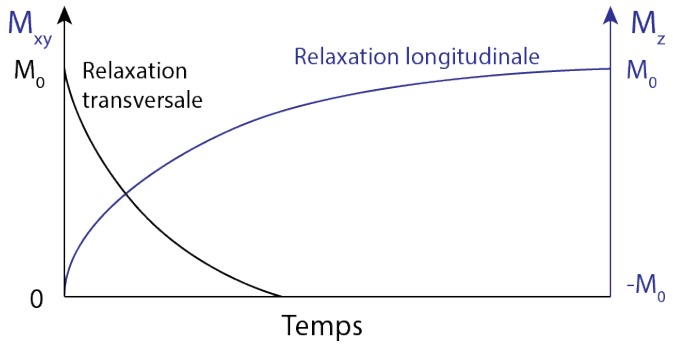


FIGURE 2.19 – Évolution des amplitudes des composantes de l'aimantation M_{xy} et M_z.

2.3.1.1 Temps de relaxation et taille de pores

Avant d'introduire les séquences que nous utiliserons, il est nécessaire de comprendre la relation entre les temps de relaxation et la porosité dans un milieu poreux. Selon la "Fast Exchange Theory", proposé dans les travaux de BROWNSTEIN et TARR [1979], les protons de l'eau dans un pore se divisent en deux groupes : l'eau libre en "bulk" ayant les mêmes propriétés que l'eau pure, et l'eau de surface, se trouvant dans une fine couche d'épaisseur ε près de la surface du pore (voir Fig.2.20).

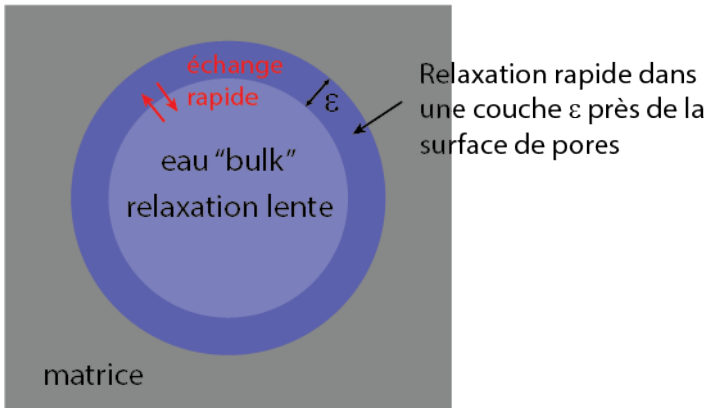


FIGURE 2.20 – Représentation de relaxation dans un pore sphérique, d'après la théorie proposée par BROWNSTEIN et TARR [1979].

Considérons que le volume et la surface du pore sont respectivement V et S. Pendant une expérience RMN, l'eau dans le pore diffuse sous l'action du mouvement Brownien.

L'eau près de la surface relaxe plus rapidement que l'eau "bulk" (dans notre cas, le T_2 de l'eau pure est 2,2 secondes à 0,5 T). BROWNSTEIN et TARR [1979] ont proposé une relation pour calculer le temps de relaxation moyen pour les deux groupes de protons dans un milieu poreux :

$$\frac{1}{T_{1,2moyen}} = \frac{1}{T_{1,2bulk}} + \frac{S}{V}\rho_{1,2surface} \tag{2.14}$$

où ρ représente la relaxivité de surface qui dépend de la structure de surface, la composition chimique à l'interface liquide-solide et la dynamique locale du fluide à l'interface. Dans le cas où les interactions entre l'eau et la surface de pore sont très fortes, le temps $T_{1,2moyen}$ peut devenir très petit devant le temps de relaxation dans le liquide « $bulk$ » , l'Eq.2.14 peut alors être simplifiée :

$$\frac{1}{T_{1,2moyen}} = \frac{S}{V}\rho_{1,2surface} \tag{2.15}$$

Avec l'équation.2.15 nous pouvons voir que T_1 ou T_2 moyen est proportionnel au rapport du volume sur la surface. Pour les pores sphériques ou cylindriques (comme dans le cas du bois), nous pouvons toujours considérer que le temps de relaxation augmente avec la taille du pore.

2.3.1.2 FID

Dans un spectromètre RMN, le champ magnétique tournant $\vec{B}_1$ est produit par une bobine. Une fois une impulsion 90° finie, cette même bobine passe du mode émetteur (~ 100 – 1000V) en mode récepteur (~ µV) pour détecteur le signal dans le plan xOy. La bobine transforme le signal RMN en signal électrique mesurable : une sinusoïde amortie, et mesure son amplitude par N échantillonnages discrets. Pour bien mesurer le signal RMN, il faut attendre que le voltage élevé ait complètement disparu. Par conséquent, après chaque impulsion RF le spectromètre reste inactif pendant un temps appelé *temps mort*. Cette mesure est répétée plusieurs fois pour augmenter le rapport signal/bruit, mais entre chaque répétition il faut attendre au moins $5 \times T_1$ pour que l'aimantation atteigne l'équilibre. On appelle cette durée d'attente le *temps de repos* (TR). Cette séquence de mesure qui consiste en une simple impulsion-acquisition est la séquence la plus simple, appelée FID (Free Induction Decay). Son principe est montré sur la Fig.2.21.

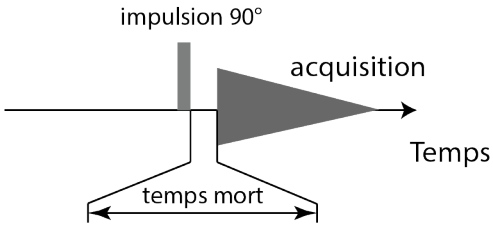


FIGURE 2.21 – Schéma de la séquence FID. Chaque mesure est séparée par un temps de repos TR (source Stéphane Rodts, Laboratoire Navier)

2.3.2 Séquences RMN

2.3.2.1 Inversion-Récupération

Le temps de relaxation T_1 est mesuré par cette séquence. Nous avons vu plus tôt que, seule la composante dans le plan xOy (plan de détection) est mesurable. L'idée de la séquence Inversion-Récupération (IR) consiste donc d'abord à inverser l'aimantation $\vec{M}$ par une impulsion de 180°puis à appliquer une impulsion 90° pour basculer $\vec{M}$ dans le plan xOy pour la mesurer (voir Fig.2.22). Le cycle d'IR est répété pour plusieurs τ délais afin de récupérer assez de points de mesure pour retracer la récupération de l'aimantation comme donnée par l'Eq.2.12.

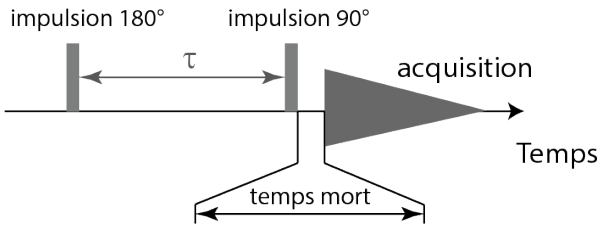


FIGURE 2.22 – Schéma de la séquence Inversion-Récupération.

2.3.2.2 Spin-Écho et CPMG

Spin-écho Comme déjà expliqué ci-dessus, dû aux inhomogénéités du champ magnétique $\vec{B_0}$ et celles d'origine moléculaire, une seule impulsion de 90°ne nous permet que de mesurer T_2^* au lieu de T_2. Pour résoudre ce problème du déphasage des spins, on attend un temps $\tau/2$ pour appliquer une deuxième impulsion, cette fois de 180°, pour mener les spins déphasés à rephaser. Au temps τ, les spins se rephasent et donnent un écho qui est mesurable (voir Fig.2.23). Cette séquence a été proposée par HAHN [1950].

CPMG La séquence CPMG (développée par Carr et Purcell puis améliorée par Meiboom et Gill, donne le nom à la séquence) [CARR et PURCELL, 1954; MEIBOOM et GILL, 1958]. Cette technique utilise une série régulière de n impulsions 180°afin de refocaliser le signal continuant à se déphaser et permettre de faire toutes les mesures par une seule séquence. Chaque écho est espacé du temps τ qui est le temps d'écho (TE).

Les mesures de T_2 dans cette étude sont effectuées avec la séquence CPMG avec un TE = 0,5 ms en mesurant les échos jusqu'à 5000 ms.

2.3.2.3 Séquence 2D

Dans le but de bien séparer les différentes composantes du signal, nous réalisons les spectres de corrélation 2D $T_2 - T_1$ en couplant une séquence IR et une séquence CPMG pour les spectres 1D (voir Fig.2.24).

Dans cette séquence, le délai de la séquence IR est augmenté par 100 étapes (100 échantillonnages de signal séparés régulièrement à l'échelle logarithmique) de 0,01 à 1000 ms. La séquence CPMG récupère les échos de 0,06 à 12 ms avec TE = 0,06 ms.

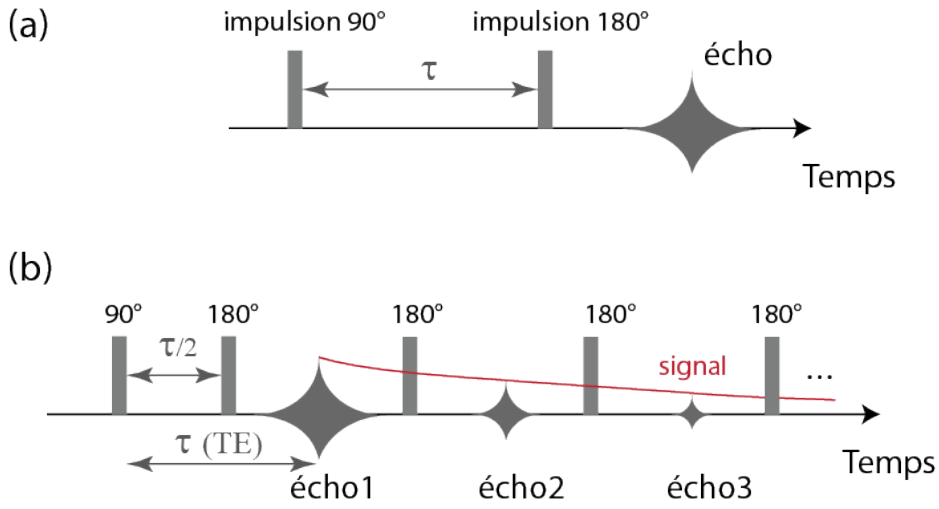


FIGURE 2.23 – Schéma des séquences (a) spin-écho et (b) CPMG.

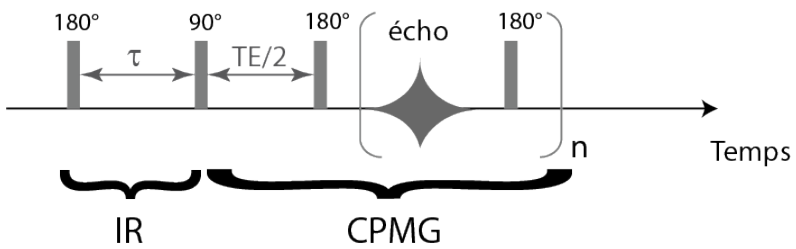


FIGURE 2.24 – Schéma de la séquence utilisée pour les données de corrélation $T_2 - T_1$

2.3.3 Imagerie par Résonance Magnétique

2.3.3.1 Principe

Le technique d'imagerie par résonance magnétique, ou IRM, repose sur le principe de la RMN couplée à l'application de différents gradients de champ de fréquence pour obtenir des informations dans les dimensions spatiales afin de construire des images ou des profils.

2.3.3.2 1D profils

Les profils 1D de la densité de protons (équivalant à la teneur en eau dans notre cas) sont obtenus par application d'un gradient de champ qui modifie les fréquences selon un axe choisi (on le définit comme l'axe z). La Fig.2.25 montre un exemple d'une séquence double-écho. Selon l'axe z, un gradient linéaire G est appliqué, induisant un champ magnétique $B_z = B_0 + G \times z$. La fréquence $\omega_{0z} = \gamma \times G \times z$ est par conséquent liée à la position spatiale dans cette direction. De cette manière, les protons d'une tranche entrent en résonance à une fréquence différente dans la tranche voisine.

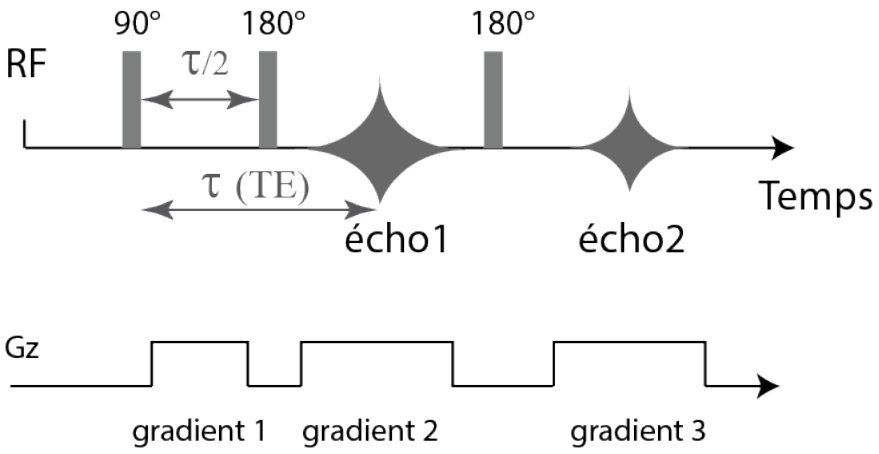


FIGURE 2.25 – Séquence double-écho utilisée pour obtenir les profils 1D de densité.

La séquence double-écho utilise les deux premiers échos de la séquence CPMG. Dans le cas du bois, afin de différencier l'eau liée et l'eau libre dans chaque tranche de mesure, au lieu de deux échos nous mesurons 16 échos pour avoir un bon nombre de points pour le traitement du signal. Pour les tests d'imbibition, les échantillons mesurent 10 cm de haut. Pour acquérir le signal sur la totalité de l'échantillon, nous avons choisi un champ de vue FOV = 16 cm avec 128 pixels, qui correspond à la résolution spatiale théorique $\delta z = 1,25\ mm$ (voir Fig.2.26). Avec ces paramètres, le temps d'écho le plus court techniquement est TE = 3,47 ms. Le gradient linéaire appliqué est environ $0,035\ T/m$ avec 500 μs de temps de stabilisation. Nous effectuons en moyenne 64 ou 128 acquisitions par profil afin d'augmenter le rapport signal sur bruit. Pour avoir une meilleure résolution temporelle (c'est-à-dire diminuer le temps de repos entre chaque mesure), nous utilisons un TR de 3s, correspondant à plus de 5 fois la valeur de T_1 la plus grande de l'eau libre dans nos échantillons de peuplier ($\sim 500\ ms$). Du fait que le T_1 de l'eau pure (l'eau dans le réci-

pient) est 2,5 secondes, seule la mesure du signal de l'eau dans le bois est prise en compte.

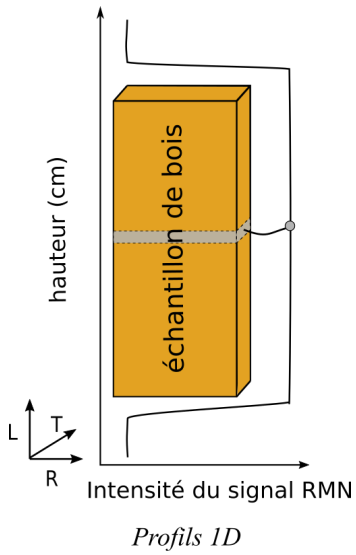


FIGURE 2.26 – Illustration d'un profil 1D de teneur en eau dans un échantillon de bois.

Dans le but de séparer le signal de l'eau liée et l'eau libre, le traitement du signal est réalisé d'une manière similaire à celle présentée dans les travaux de MENON et collab. [1989]. Avec la distribution de T_2 obtenue (voir Fig.3.9 au chapitre 3), nous considérons que le signal total de l'eau dans le bois est composé de deux parties exponentielles dans chaque tranche. Nous pouvons ainsi imaginer que le signal RMN acquis dans une tranche est affecté par deux relaxations locales $T_{2,b(z)}$ et $T_{2,f(z)}$, qui correspondent au temps de relaxation pour l'eau liée (*b* pour *bound water*) et l'eau libre (*f* pour *free water*). Puis, avec $m_{0,b(z)}$ et $m_{0,f(z)}$ représentant le profil de la densité des spins pour l'eau liée et l'eau libre, nous pouvons écrire les profils obtenus avec *n* échos comme :

$$Profil_n(z) = m_{0,b(z)} \times exp(-\frac{n\mathrm{TE}}{\mathrm{T}_{2,b(z)}}) + m_{0,f(z)} \times exp(-\frac{n\mathrm{TE}}{\mathrm{T}_{2,f(z)}}) \tag{2.16}$$

Pour estimer l'erreur induite par cette approche, nous pouvons générer un signal IRM synthétique qui représente les informations de relaxation en nous basant sur la distribution de T_2 mesurée, et ajouter artificiellement le niveau de bruit similaire à celui des expériences expérimentales. Ensuite, le signal synthétique est traité avec une régression bi-exponentielle. Puis le résultat est comparé avec les données expérimentales. Nous estimons ainsi que l'erreur de régression est de moins de 3%.

Il faut noter qu'avec le temps d'écho de 3,47 ms, la teneur en eau liée dans le domaine hygroscopique à basse humidité (typiquement à < 55% HR, le T_2 de l'eau liée $\leq 1ms$) n'est plus quantifiable voire invisible. Comme dans cette étude nous sommes dans le domaine d'imbibition, c'est-à-dire avec la MC souvent supérieure au PSF, et le T_2 de l'eau liée dans ce cas est d'environ 4 ms, avec l'Eq.2.16 nous sommes capable de la quantifier. Nous allons voir plus tard au chapitre 3 que, même à basse humidité, nous pouvons quand même étudier les comportements de l'eau liée de façon qualitative avec l'évolution de la forme

des profils.

Il faut aussi noter que nous aurions pu appliquer une régression tri-exponentielle afin d'avoir plus d'informations sur la structure interne de l'échantillon. Comme nous le verrons plus tard au chapitre 3, nous observons 3 pics sur la distribution de l'eau dans un échantillon de peuplier, dont un pic qui relaxe le plus rapidement, correspondant à l'eau liée, et deux pics relaxant plus lentement correspondant à l'eau libre, probablement l'eau libre dans les fibres ($20-200\ ms$) et dans les vaisseaux ($200-2000\ ms$) [LABBÉ, 2002]. Malheureusement l'application d'un fit tri-exponentiel est très limitée par le nombre d'échos (16), le rapport signal sur bruit, et aussi par l'évolution des deux pics de l'eau libre pendant l'imbibition. Ainsi, tous ces facteurs ne nous permettent pas une bonne distinction entre les deux pics associés à l'eau libre. De plus, il semble qu'il n'est pas tout à fait nécessaire de distinguer les deux pics de l'eau libre, étant donné que nous ne connaissons pas l'origine de ces deux populations de l'eau libre. Bien qu'il semble naturel de les attribuer aux deux éléments de structure de peuplier associés à des tailles de pores différentes : le pic intermédiaire de l'eau libre dans les fibres et le pic le plus lent de l'eau libre dans les vaisseaux (selon l'Eq.2.15), le rapport de l'intensité de ces deux pics ne correspond pas au rapport de volume entre les fibres et les vaisseaux obtenu par observations aux microscopes (voir Section.2.1.1.5). Ainsi, nous préférons étudier les deux populations d'eau libre dans leur ensemble et évitons d'essayer de les distinguer sans interprétation claire.

Pour l'huile de silicone, l'effet de la relaxivité de surface est très faible, l'influence de la taille de pores sur la mesure de T_2 est négligeable. Nous allons voir plus tard que le temps de relaxation de l'huile "bulk" est quasi équivalent à celui de l'huile imbibée dans le bois. Ainsi, pour les profils de l'huile de silicone, nous utilisons la séquence double-écho et seulement le premier écho est utilisé pour le traitement de données.

2.3.3.3 Images

L'acquisition des images consiste dans un premier temps à sélectionner une tranche dans un axe en appliquant un gradient de sélection de tranche. Ensuite, on utilise un gradient de codage de phase et un gradient de lecture pour coder cette tranche selon les axes x et y (voir Fig.2.27). Cette opération est répétée jusqu'à l'obtention de la résolution nécessaire, et jusqu'au codage de tout l'espace k associé à l'échantillon. Cet espace est un plan de Fourier contenant les signaux enregistrés lors de la mesure.

Dans cette étude, nous utilisons une séquence multi-spins multi-échos avec 8 échos enregistrés. Le TE est de 10 ms et le délai de recyclage est de 600 ms. Nous réalisons au total 28 acquisitions pour obtenir une image avec un bon rapport signal sur bruit tout en gardant la durée de scans inférieure à 30 min (28 minutes en moyenne). Comme le T_2 de l'eau liée est d'environ 4 ms voire plus court, l'eau liée n'est donc pas visible sur les images. Nous pouvons quand même étudier la distribution de l'eau libre dans nos échantillons. Pour chaque mesure, les images sont acquises en même temps dans 5 tranches verticales (RL) d'épaisseur 2 mm, séparées de 2 mm dans la direction T. La résolution obtenue est $0,47(\mathrm{R}) \times 2,19(\mathrm{L})\ mm^2$. L'illustration de la sélection des tranches est montrée sur la Fig.2.28.

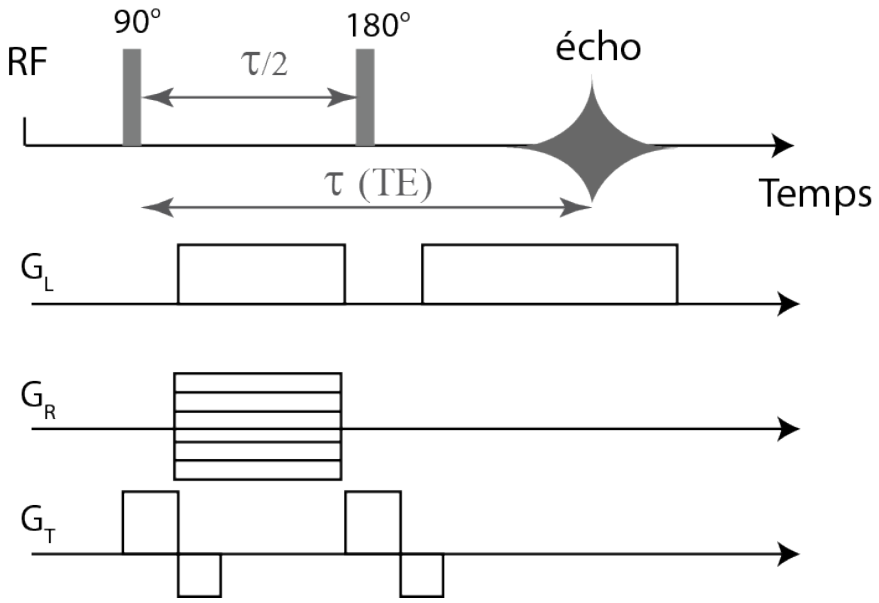


FIGURE 2.27 – Séquence utilisée pour l'acquisition d'images.

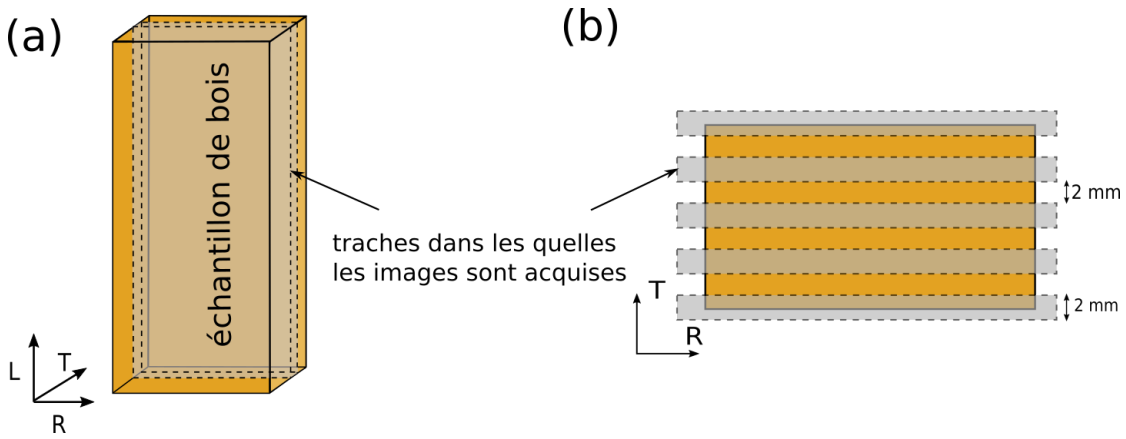


FIGURE 2.28 – Illustration de la sélection des tranches. **(a)** vue de face ; **(b)** vue transverse.

2.3.3.4 Traitement de signal

Pour avoir la densité locale de protons $Signal(z)$ dans une tranche d'épaisseur δz et calibrer le signal RMN en masse de liquide, nous effectuons d'abord une mesure avec les mêmes paramètres sur un échantillon de liquide pur (eau déminéralisée ou l'huile de silicone). Le liquide est ajouté dans un tube cylindrique en verre de diamètre intérieur de $1,655\ cm$. Le profil du tube de liquide avec 16 échos est présenté sur la Fig.2.29.a. Chaque point de mesure représente le signal du liquide dans la tranche correspondante de n-ième écho. On a :

$$Signal_{ref,n}(z) = \mathrm{A} \times masse_{ref}(z) = \mathrm{A} \times (\pi \mathrm{D}^2 \delta z/4) \times \rho_0 \tag{2.17}$$

où A est une constante, D le diamètre intérieur du tube de référence, ρ_0 densité du liquide (eau ou huile), n le nombre d'écho. Étant donné que le signal RMN est proportionnel à la densité des protons, nous avons : $\frac{Signal_n(z)}{Signal_{ref,n}(z)} = \frac{m_l(z)}{m_{ref}(z)}$. Finalement nous pouvons utiliser ce ratio pour normaliser le signal de chaque écho et nous obtenons :

$$m_{l,n}(z) = \frac{Signal_n(z)}{Signal_{ref,n}(z)} \times (\pi \mathrm{D}^2 \delta z/4) \times \rho_0 \tag{2.18}$$

où $m_{l,n}(z)$ est le profil en masse de liquide de l'échantillon. Pour l'eau, après l'application du fit bi-exponentiel décrit par Eg.2.16, nous obtenons les profils de teneur en eau liée et en eau libre séparément (voir Fig.2.29.c.)

Nous pouvons aussi remarquer sur les profils de référence que, même si la masse d'eau dans chaque pixel est constante (tube cylindrique avec des dimensions connues), au lieu de profils droits nous obtenons des profils courbés. Le signal est inhomogène, surtout en s'éloignant du centre de l'aimant. Ceci est le résultat de la bande passante de l'antenne. Cependant, en utilisant le ratio $\frac{Signal_n(z)}{Signal_{ref,n}(z)}$ nous pouvons donc non seulement calibrer le signal mais aussi corriger cette inhomogénéité.

2.3.4 Conditions expérimentales

2.3.4.1 Appareils

Les expériences de la relaxométrie RMN du proton sont réalisées à l'aide un "spectromètre de table" Bruker MINISPEC MQ20 (voir Fig.2.30.a) qui fonctionne à 0,5T (20 MHz pour ^{1}H). Ce champ électromagnétique est adapté pour étudier les milieux poreux [PHILIPPOT et collab., 1998]. Le spectromètre permet d'analyser des échantillons introduits dans un tube en verre de diamètre extérieur de 18 mm (le même tube utilisé pour calibrer et normaliser les profils d'IRM, décrit par l'Eq.2.17). La bobine permet des mesures quantitatives si l'échantillon ne dépasse pas les 10 mm du fond du tube. Par conséquent, des échantillons découpés d'environ $1 \times 1 \times 1 cm^3$ sont préparés pour les analyses sur Minispec.

Pour les expériences d'IRM, nous avons utilisé un spectromètre imageur Bruker DBX 24/80 (voir Fig.2.30.b) qui fonctionne également à 0,5 T. L'imageur est équipé d'une bobine de cage d'oiseaux de 20 cm de diamètre intérieur. Le gradient utilisé est de 50 mT/m.

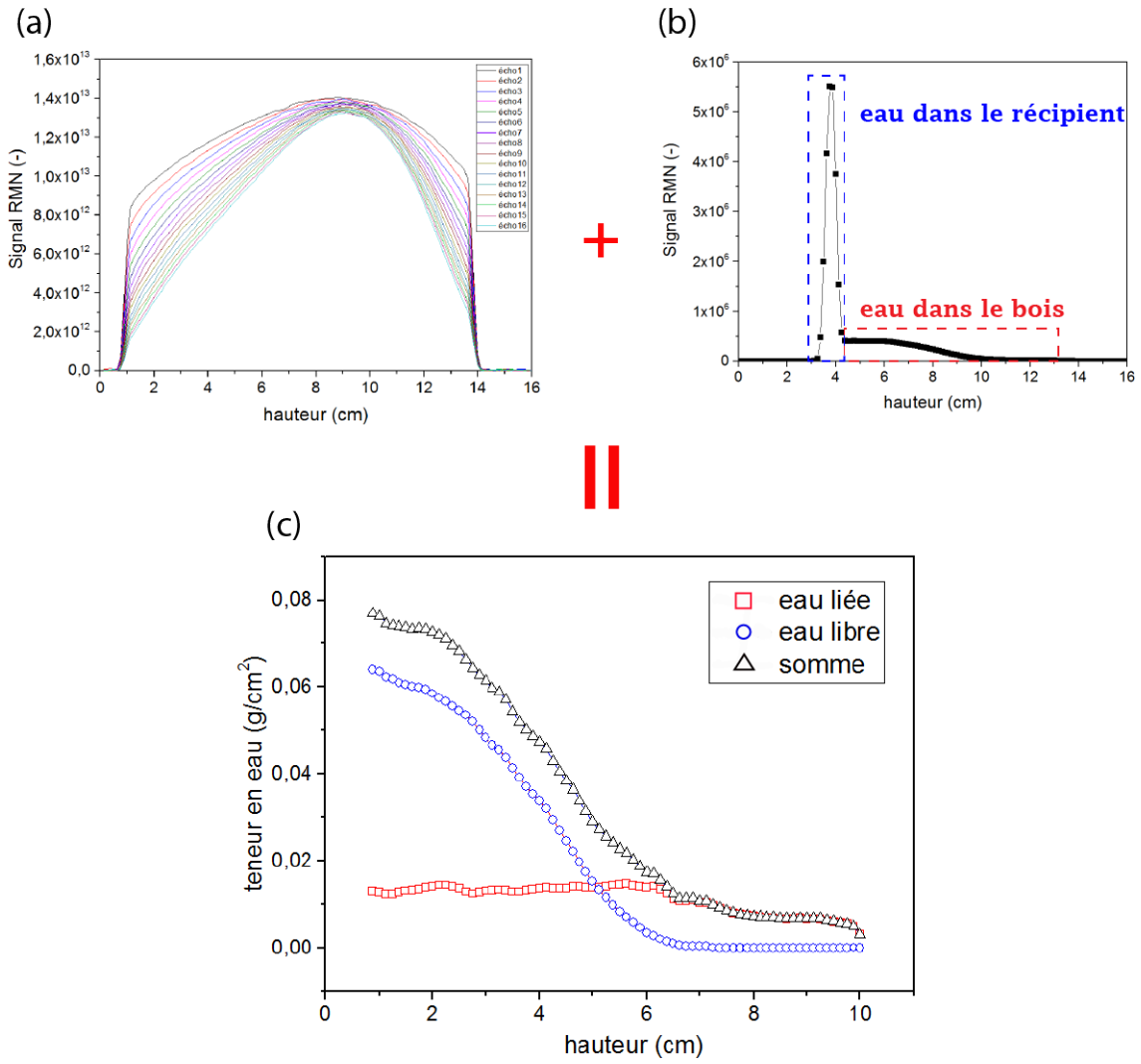


FIGURE 2.29 – Représentation du traitement de données pour l'obtention de la distribution de teneur en eau liée et eau libre pour un échantillon imbibé d'eau. **(a)** Profils de référence d'un tube d'eau. **(b)** Profil de signal RMN de l'échantillon. Par souci de clarté, seul le premier écho est présenté. **(c)** Profils obtenus après traitement.

Le chariot d'échantillon est connecté à un ordinateur avec lequel nous pouvons ajuster précisément la position de l'échantillon.

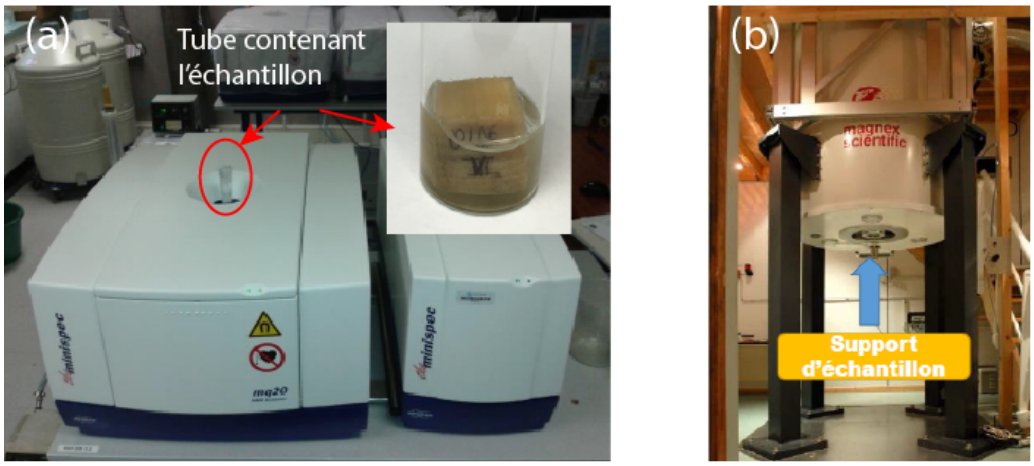


FIGURE 2.30 – **(a)** Spectromètre Bruker MINISPEC utilisé pour les mesures de relaxivité. Dans l'insert : image d'un échantillon imbibé dans le tube. **(b)** Imageur par résonance magnétique du Laboratoire Navier.

2.3.4.2 Installations expérimentales

Spectromètre Minispec Comme on l'a vu dans la section précédente, pour les mesures de relaxométrie, l'échantillon doit être introduit dans un tube de 18 mm de diamètre et ne doit pas dépasser 12 mm. Pour les expériences d'imbibition, l'échantillon est simplement mis en contact avec de l'eau (voir Fig.2.30.a), puis les mesures de temps de relaxation sont effectuées successivement pour étudier l'évolution des temps de relaxation au cours du temps. Il s'agit d'une mesure globale qui ne tient pas compte de l'inhomogénéité de l'échantillon ni de la direction d'imbibition au cours du processus d'imbibition.

Installations dans l'IRM Le support d'échantillon de l'IRM avec 20 cm de diamètre nous permet d'introduire des montages expérimentaux plus complexes que dans le Minispec.

Pour les expériences d'imbibition, le montage est simple. L'échantillon est plongé dans l'eau à 1 cm de profondeur dans un bécher de 800 mL. La partie supérieure du bécher est couverte de parafilm pour éviter l'évaporation pendant la durée de l'expérience (3 jours). Dès que l'échantillon est monté au centre de l'antenne à l'aide d'un chariot, l'acquisition de signal commence.

Pour les expériences de séchage *in situ* dans l'IRM, nous avons utilisé le même dispositif de séchage que celui développé dans les travaux de thèse de KEITA [2014]. Un schéma du dispositif de séchage est présenté sur la Fig.2.31.a. L'air sec effleure l'échantillon dans un canal en PMMA de 10 mm de hauteur et 60 mm de largeur. La pression du flux d'air d'entrée est contrôlée à 0.15 Mpa pour avoir une vitesse d'air d'environ 1 m/s. L'échantillon est placé dans un support d'échantillon (voir Fig 2.31.b) et sa hauteur est ajustée

pour que la surface libre de l'échantillon soit au même niveau que le bord inférieur du canal. Les 5 faces de l'échantillon sont couvertes de parafilm pour que le séchage s'effectue seulement à la surface libre.

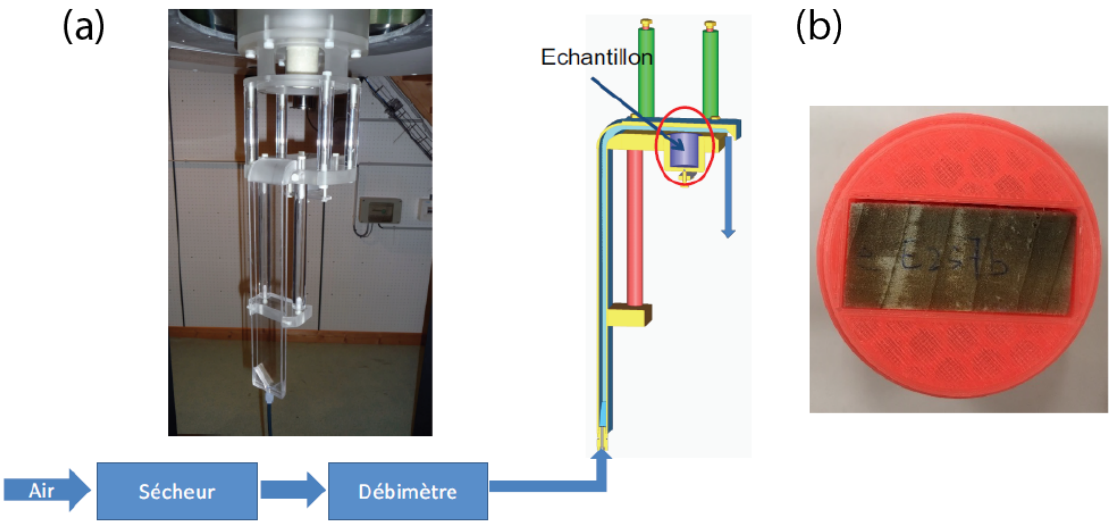


FIGURE 2.31 – **(a)** Schéma du dispositif de séchage in situ dans l'IRM (extrait de la thèse de KEITA [2014]). **(b)** Vue sur la surface libre d'un échantillon dans le support d'échantillon.

2.3.5 Exemple : effets de bords étudiés par IRM

Les effets de bords et l'impact de la peinture sur les expériences d'imbibition sont présentés ici comme un exemple d'analyse par IRM. Nous allons voir dans cet exemple une combinaison d'analyse des profils 1D et des images 2D, afin de mieux comprendre leurs fonctionnements et les avantages de chaque méthode.

Plusieurs études [SALIN, 2008; SEGERHOLM et CLAESSON, 2008] ont déjà mentionné que, pendant la préparation d'échantillons de bois, les bords (une couche de quelques mm au-dessous de la surface) sont souvent abîmés à cause du polissage, sciage, etc. Ces bords abîmés pourraient influencer les propriétés et la qualité du matériau. Par exemple, les surfaces abîmées pourraient donner lieu à de nouveaux passages pour le liquide et ainsi influencer la dynamique de l'imbibition dans l'échantillon [SALIN, 2008]. De plus, ces effets sont d'autant plus importants que les dimensions de l'échantillon sont faibles [SALIN, 2008]. Dans l'intention d'étudier ces effets de bords, nous commençons par étudier un échantillon sans peinture imbibé d'eau par IRM.

Commençons par regarder les images dans le plan RL passant par le centre l'échantillon prises à différents moments (7h, 31h et 73h) au cours de l'imbibition. Le signal d'eau est représenté par le niveau de gris plus élevé (points blancs) et l'échantillon de bois lui-même n'est pas visible à cause du T_2 très court des protons dans les polymères. Dans un premier temps, nous remarquons que l'eau pénètre progressivement au milieu

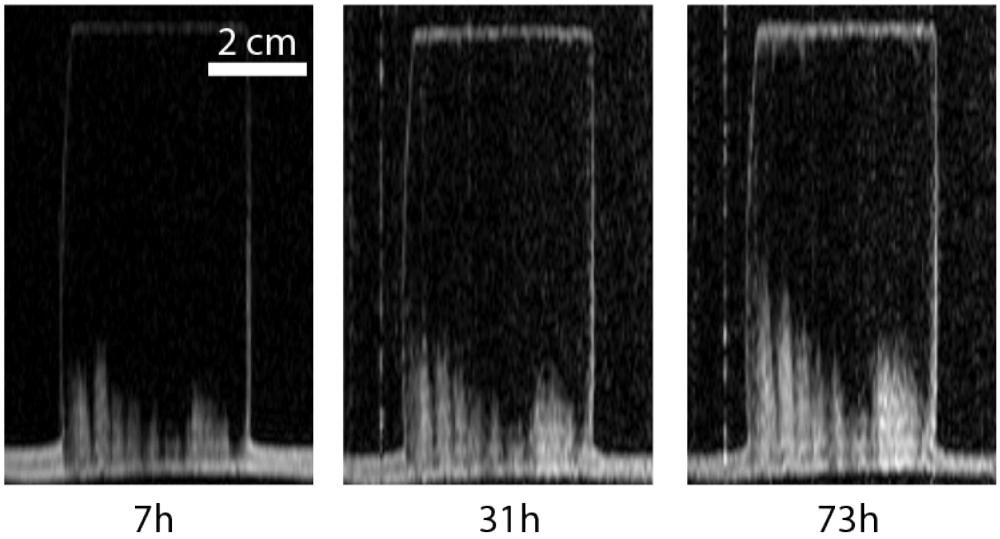


FIGURE 2.32 – Série d'images montrant la distribution d'eau dans une tranche (plan RL) au milieu d'un échantillon sans peinture au cours de l'imbibition : à 7h, 31h et 73h.

de l'échantillon. À la fin de l'expérience (3 jours), l'eau au centre de l'échantillon a pénétré sur une hauteur d'environ 4 cm. Le point le plus intéressant est la présence d'un signal d'eau qui semble dessiner le contour de l'échantillon dès 7h (voir Fig.2.32). Cela signifie qu'il y a une petite quantité d'eau qui monte rapidement le long des bords et atteint la partie supérieure de l'échantillon, qui se trouve à environ 10 cm du niveau d'eau du réservoir. Nous pouvons voir cette tendance plus clairement si nous comparons maintenant une tranche d'image qui contient une couche de surface latérale abîmée (noter slice *i*) avec une tranche passant par le milieu de l'échantillon (noter slice *ii*) sur la Fig.2.33. Dans la couche de surface abîmée (slice *i*), nous observons le signal d'eau sur presque toute la longueur de l'échantillon, alors qu'au milieu de l'échantillon (slice *ii*) la pénétration s'arrête à seulement quelques cm.

Regardons maintenant le profil IRM obtenu avec la séquence double écho (ligne noire continue, seule l'amplitude du premier écho est présentée) sur la Fig.2.34. La quantité d'eau absorbée est plus importante près du fond de l'échantillon (sur une distance d'environ 2 cm) puis nous observons une diminution de la teneur en eau dans la direction d'imbibition. Un pic du signal d'eau est observé au sommet de l'échantillon (voir Fig.2.34), ce qui suggère une pénétration rapide d'une faible quantité d'eau qui atteint la surface supérieure de l'échantillon puis s'accumule dans cette région. Ceci peut être confirmé par le contour de l'échantillon montré par le signal de l'eau sur la Fig.2.32. Nous observons ainsi que la distribution de l'eau présente une forme de "U".

Afin de mieux comprendre la forme de la distribution de l'eau, nous intégrons l'intensité de signal sur les images d'IRM et obtenons la projection de l'intensité le long de

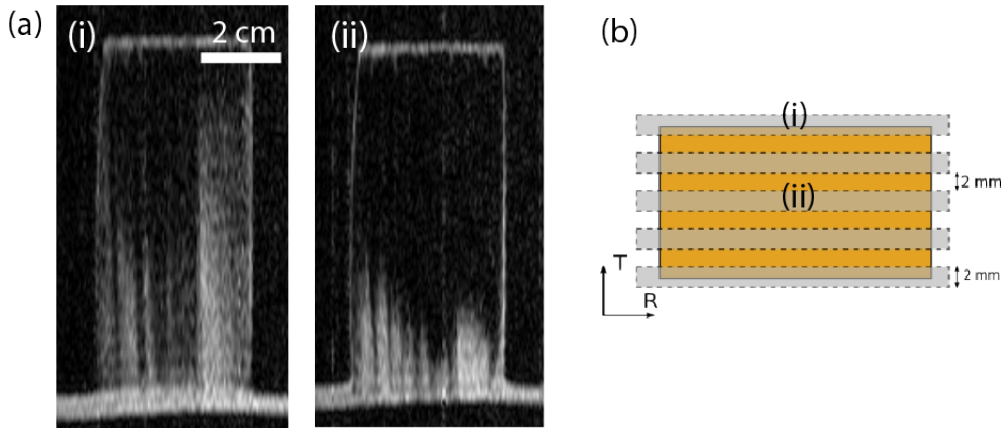


FIGURE 2.33 – **(a)** Comparaison des images (plan RL) dans différentes tranches à 73h. **(b)** Schéma montrant les deux tranches : "slice i" contenant une couche de surface latérale et "slice ii" passant au milieu de l'échantillon.

l'axe longitudinal. Comme montré par la Fig.2.33.b, pour chaque mesure nous obtenons 5 images de 2 mm d'épaisseur en T, séparées de 2 mm entre deux. Parmi les 5 images nous en avons deux contenant les deux surfaces latérales en RL (slice *i*) et trois autres de type (*ii*). Pour estimer l'intensité du signal sur l'ensemble de l'échantillon, l'amplitude de signal dans les trois tranches ii est moyenné pour donner une estimation de signal dans les 4 tranches de 2 mm d'épaisseur où l'acquisition d'image n'est pas effectuée (voir Fig.2.33.b). Puis l'addition du signal dans l'ensemble de l'échantillon est effectuée, nous obtenons alors la projection du signal au sein de l'échantillon selon la direction longitudinale (ligne continue sur la Fig.2.34). Cette approche est validée par comparaison entre le profil obtenu à partir des images et le profil standard acquis avec la séquence double-écho : nous remarquons que les deux distributions sont effectivement similaires (voir Fig.2.34).

Comparons maintenant les profils obtenus dans différentes tranches. On peut voir sur la Fig.2.34 que le profil de l'eau dans la couche abîmée montre un gradient de concentration qui s'étend jusqu'à 8 cm, tandis que au milieu de l'échantillon la pénétration est limitée à une région ne dépassant pas 2,5 cm du fond. Tous les profils montrent un pic au sommet de l'échantillon. Cette observation est cohérente avec la proposition de surfaces abîmées formées au cours de la préparation d'échantillons, qui suggère une pénétration plus rapide dans les couches (typiquement 1-2 mm) au-dessous des surfaces, que dans le reste de l'échantillon [SALIN, 2008]. On suggère que en raison de la structure complexe de la surface de l'échantillon, la dynamique d'imbibition capillaire dans une matrice partiellement ouverte à l'air est différente de celle au sein de la structure interne des vaisseaux. Nous verrons plus loin que cet écart de dynamique résulte surtout du ralentissement de la dynamique de l'eau interne, du fait des interactions avec les parois (adsorption).

Combinons la Fig.2.32 et la Fig.2.34, nous pouvons voir que les couches de surfaces abîmées sont limitées à 1-2 mm d'épaisseur. Même si la quantité d'eau dans ces couches semble être faible par rapport au signal total de l'ensemble de l'échantillon, leur présence peut fausser les mesures de la position du front d'eau libre (voir Fig.2.35). De plus, à cause

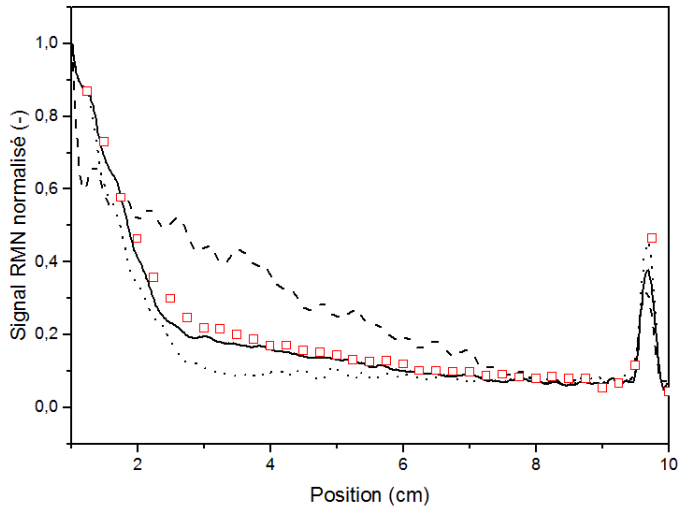


FIGURE 2.34 – Profil de teneur en eau en traçant l'amplitude du premier écho de la séquence double écho (carrés rouges) et la distribution de l'eau estimée à partir des images 2D (lignes solides, en tirets et en points ronds) dans un échantillon sans protection de peinture après 7h d'imbibition. Les lignes correspondent à la projection du signal RMN normalisé dans différentes tranches d'images : ligne en tirets (slice (*i*)), ligne en points ronds (slice (*ii*)), linge continue (l'ensemble de l'échantillon).

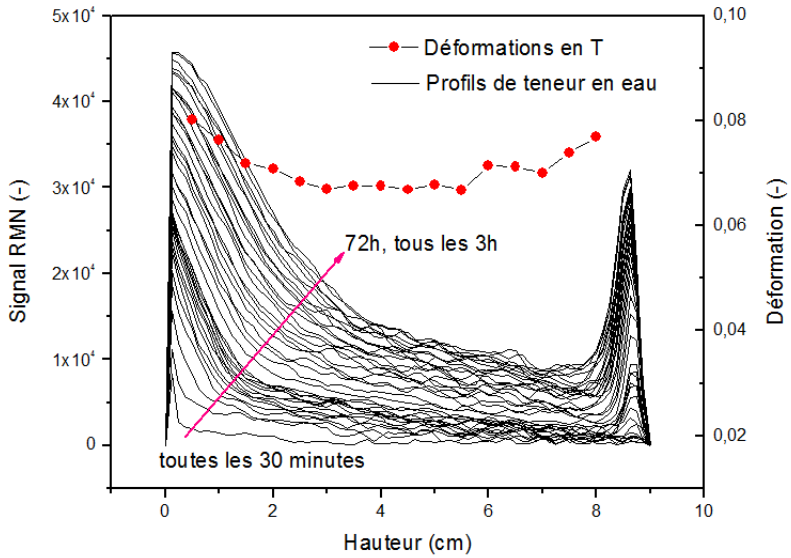


FIGURE 2.35 – Profils de teneur en eau dans un échantillon sans protection de peinture au cours de l'imbibition. Les profils sont montrés toutes les 30 minutes (lignes continues). Une mesure de déformation est effectuée à la fin de l'expérience. Les déformations en T sont représentées en points rouges.

de la présence d'eau libre dans les couches latérales abîmées, nous pouvons imaginer des sources d'eau disponibles le long de l'axe longitudinal, à partir desquelles la diffusion d'eau liée peut avoir lieu et donc changer significativement les conditions aux limites. Le profil de déformation selon T montre également une forme de "U" (voir les points rouges sur la Fig.2.35). Cela met en évidence l'absorption de l'eau liée sur toute la hauteur de l'échantillon sans peinture.

De ce fait, nous appliquons de la peinture sur les quatre surfaces latérales (RL et TL) afin de limiter les effets de bords pour les expériences d'imbibition. Nous verrons plus loin sur les images au chapitre 3 que la peinture empêche effectivement la pénétration rapide d'eau sur les bords, et les profils IRM ou de déformation n'ont plus une forme de U.

2.4 Microtomographie aux rayons X

La microtomographie aux rayons X (abrégé µTRX) nous permet de réaliser des observations *in situ* au sein d'un échantillon à l'échelle microscopique. De nombreuses études ont montré le fort potentiel de cette technique non seulement pour étudier la microstructure hétérogène du bois [KOUBAA et collab., 2002; STEPPE et collab., 2004], mais aussi pour comprendre les interactions entre l'eau et le bois : en absorption/imbibition [JOHANSSON et KIFETEW, 2010; LI et BULCKE, 2016; SANDBERG et SALIN, 2012], ou pendant le séchage [ALKAN et collab., 2007; WIBERG et MOREN, 1999]. Dans cette étude, nous focalisons notre attention sur la forme des interfaces eau-air au sein des conduits hydrauliques de bois (notamment dans les vaisseaux) et analysons de façon quantitative la dynamique de l'avancée des interfaces.

Un échantillon de charme a été observé pendant l'imbibition d'eau par µTRX synchrotron sur la ligne PSICHE dans le cadre de la thèse de Marie Bonnet [BONNET, 2017]. Les images sont analysées pendant ces travaux de thèse. Les observations complémentaires avec l'huile de silicone, sont réalisées avec le tomographe du laboratoire Navier, avec l'aide de Patrick Aimedieu. Une image de l'imbibition dans le peuplier avec l'huile de silicone a également été acquise pendant les essais en avril 2018 sur la nouvelle ligne Anatomix du synchrotron SOLEIL (numéro du proposal : 20171213).

2.4.1 Principes

Lorsqu'un objet est exposé à un faisceau de rayons X, les rayonnements X sont partiellement absorbés par la matière. L'atténuation de l'intensité des rayons X dépend des propriétés du matériau, tels le coefficient d'atténuation du matériau ou l'épaisseur de l'objet. Typiquement plus le matériau est dense ou épais, plus l'atténuation est forte. Ce phénomène est décrit par la loi de Beer-Lambert :

$$\mathrm{I(E)} = \mathrm{I} * \mathrm{E} \cdot e^{-\int_{x_0}^{x_{max}} \mu(x,\mathrm{E})dx} \tag{2.19}$$

où I(E) est l'intensité du faisceau atténué, I ∗ (E) l'intensité initiale, l'intégrale signifie la somme de l'atténuation à travers l'échantillon, µ est le coefficient d'atténuation linéaire

qui est également une fonction dépendant de nombreux paramètres (numéro atomique, énergie des rayons X, densité locale et constituants élémentaires l'échantillon, etc).

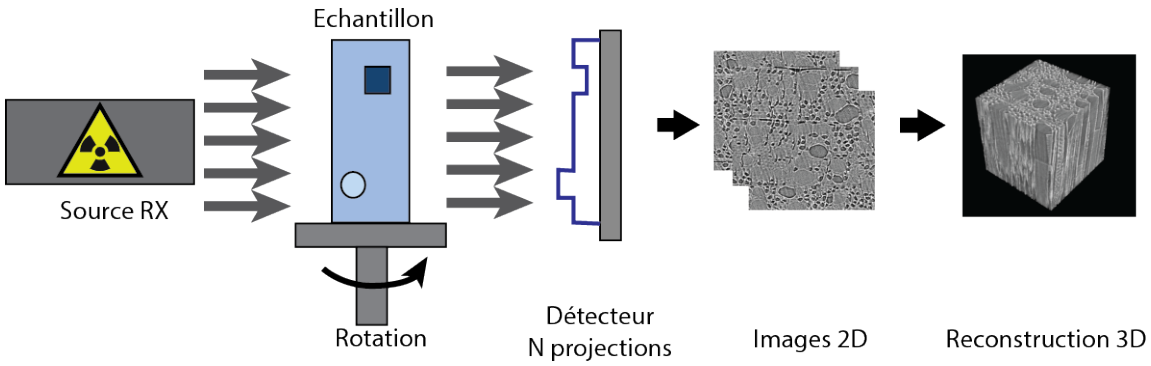


FIGURE 2.36 – Principe de la microtomographie aux rayons X.

Le principe de la µTRX est présenté sur la Fig.2.36. Il consiste d'abord à positionner une source de rayons X, un objet et un détecteur selon l'axe horizontal pour acquérir une succession de projections radiographiques, puis à reconstruire une image volumique de l'objet à partir de ces projections.

Selon les besoins, le rayonnement produit par la source peut être conique - c'est le cas de la microtomographie de laboratoire ; ou parallèle - c'est le cas de la microtomographie synchrotron. Dans le cas de la microtomographie de laboratoire, le grandissement optique est défini par G = SID/SOD, où SOD est la distance entre la source et l'objet, SID est la distance entre la source et le détecteur, comme montré sur la Fig.2.37. Étant donnée que la taille du pixel du détecteur est p, la taille de voxel de l'image r est donnée par l'expression :

$$r = p \times \frac{\text{SOD}}{\text{SID}} \tag{2.20}$$

Pour diminuer la taille de voxel de l'image, nous pouvons donc adapter la distance entre la source et l'échantillon. Au laboratoire Navier, le spectre de rayons X est polychromatique, et typiquement une durée de plus d'une heure est nécessaire pour étudier la structure de l'échantillon. Par conséquent, seules les images "statiques" sans évolution au sein de l'échantillon sont réalisées au laboratoire.

Au contraire, dans le cas de la microtomographie synchrotron, les rayons X synchrotron sont parallèles, le grandissement est obtenu grâce à l'ajout d'un système optique. Nous ne pouvons obtenir que quelques valeurs discrètes de tailles de voxel. Grâce au flux élevé des rayons X, le temps d'acquisition au synchrotron est réduit à quelques secondes ou plusieurs minutes, ce qui permet des observations « dynamique » *in situ* des expériences d'imbibition.

Une comparaison entre les deux types de tomographie est présentée dans le tableau 2.4.

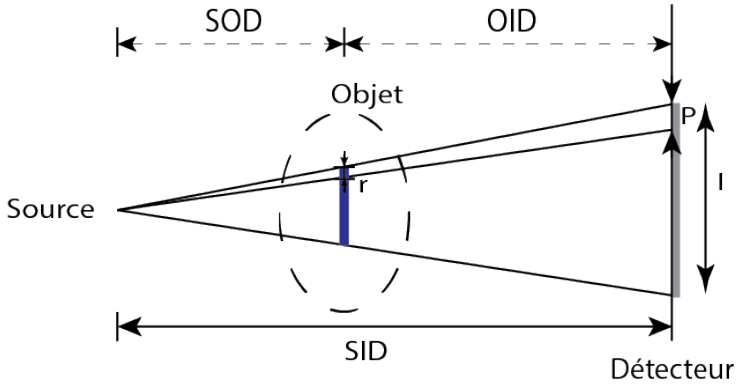


FIGURE 2.37 – Calculs de la résolution dans le cas de la tomographie de laboratoire.

Type de tomographie	Laboratoire	Synchrotron (ligne PSICHE)
Source RX	tube à rayons X	accélérateur de particules
Géométrie du faisceau	conique	parallèle
Taille de voxel	0,5 - 100 µm	0,1 - 10 µm
Grandissement	continu	discret
Taille d'échantillon	cm	mm
Temps d'acquisition	minutes à heures	secondes à minutes

TABLEAU 2.4 – Comparaison entre la microtomographie de laboratoire et la microtomographie synchrotron.

2.4.2 Protocoles expérimentaux

Préparations d'échantillons Les échantillons de bois pour les observations par µTRX du laboratoire ont une forme d'allumette de dimension 2(R) × 2(T) × 20(L) mm^3. Pour les préparer, nous utilisons d'abord une scie à ruban pour obtenir de petits morceaux avec 2 cm en direction L afin de faciliter les découpes suivantes. Nous découpons ensuite les échantillons par fendage à l'aide d'un ciseau à bois pour avoir 2 mm en R et 2 mm en T (voir Fig.2.38). L'échantillon pour les images de µTRX synchrotron est préparé de la même manière mais avec une taille différente (1,75(R) × 1,75(T) × 6(L) mm^3).

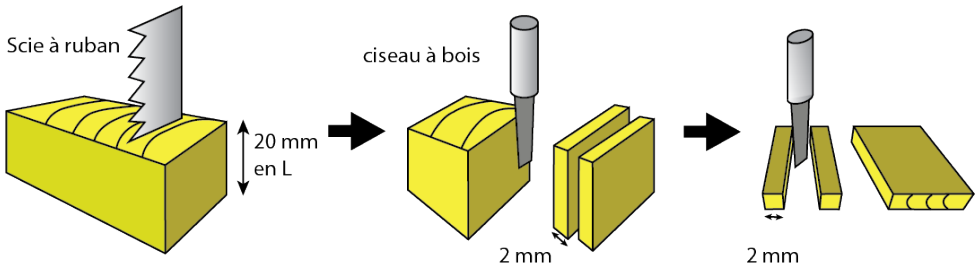


FIGURE 2.38 – Protocole de préparation d'échantillons pour les observations par µTRX.

Cas de la µTRX synchrotron Un échantillon de charme au cours de l'imbibition d'eau a été observé par µTRX synchrotron. Les images ont été acquises au centre de rayon-

nement synchrotron SOLEIL (en France, numéro de proposal : 20141433) sur la ligne PSICHE [KING et collab., 2016]. 1000 projections distribuées sur 180° de l'angle de rotation ont été réalisées. L'énergie de la source monochromatique de rayons X est 24,9 keV. Le système de détection utilise un scintillateur LuAG d'épaisseur 90 µm pour convertir les rayons X en une image à lumière visible. Cette image est transmise à une caméra (Hamamatsu ORCA Flash4.0 sCMOS) avec un microscope équipé d'un objectif 5x Mitutoyo, ce qui donne finalement 1,3 µm de taille de voxel. Ensuite, les images volumiques de $2048 \times 2048 \times 1800$ $voxel^3$ sont reconstruites à l'aide du logiciel phHST2 [MIRONE et collab., 2014].

Le principe de l'installation expérimentale dans le tomographe synchrotron est présentée sur la Fig.2.39. L'échantillon (conditionné à 55 % HR) est collé à un support horizontal puis l'ensemble est mis dans un petit récipient en plastique de diamètre environ 2 cm. Avant l'imbibition, une image de référence est acquise sur l'échantillon sec. Puis de l'eau déminéralisée est injectée par une seringue dans le récipient. On suppose que les transferts transverses sont négligeables et que l'imbibition s'effectue principalement selon la direction longitudinale. Quatre images successives sont obtenues, pour une durée moyenne de chaque acquisition légèrement inférieure à 7 minutes, et l'intervalle entre le début d'une acquisition et le début de la suivante est environ 8 minutes. L'analyse d'image est effectuée dans un volume d'intérêt (VOI) de taille de 1600(R)×1500(T)×1024(L) $voxel^3$ au centre de l'échantillon.

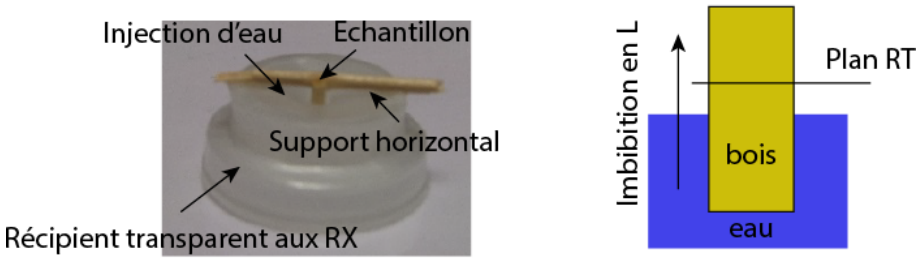


FIGURE 2.39 – Dispositif pour les tests d'imbibition sur la ligne PSICHE du SOLEIL.

Cas de la µTRX du Laboratoire Navier Comme expliqué ci-dessus, le temps d'acquisition typique du microtomographe du Laboratoire Navier est de l'ordre d'une ou plusieurs heures. Le suivi dynamique comme dans le cas du synchrotron n'est pas possible dans le cas de l'imagerie du laboratoire. De plus, pour avoir une taille de voxel comparable à celle obtenue par le microtomographe synchrotron, la distance SOD doit être réduite (voir Eq.2.20). En effet, la taille de voxel la plus petite de 1,7 µm est obtenue en réduisant la SOD à seulement 1 mm. Avec cette contrainte de distance, l'installation expérimentale pour effectuer les tests d'imbibition au sein du tomographe synchrotron n'est pas possible sur le microtomographe du laboratoire. Par conséquent, nous avons adapté le protocole expérimental et seuls des échantillons pré-imbibés d'huile de silicone ont été observés.

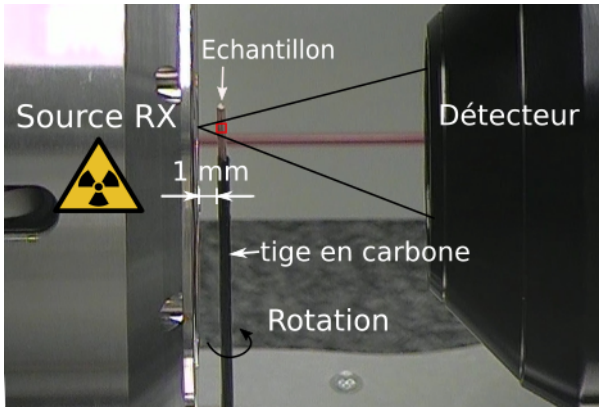


FIGURE 2.40 – Montage expérimental dans le microtomographe du Laboratoire Navier.

Pour ces observations par µTRX, trois échantillons de charme sont mis en contact avec de l'huile de silicone 47V350 pour 1 min, 2 min et 5 min d'imbibition, respectivement. Puis l'imbibition est arrêtée et nous considérons que la distribution de l'huile n'évolue plus dans les échantillons. Des observations préliminaires par radiographie sont effectuées pour choisir un échantillon dans lequel la distribution de l'huile est relativement homogène et les interfaces se trouvent plus ou moins à mi-hauteur de l'échantillon. L'échantillon imbibé pendant 2 minutes est alors choisi. Cet échantillon est directement collé sur une tige en carbone par le bas (voir Fig.2.40). Les images de µTRX sont acquises à l'air ambiant (à 25°C, l'humidité relative de la salle n'est pas contrôlée). Pour assurer qu'il n'y a pas d'évaporation de l'huile de silicone pendant la durée de scan, dans une autre expérience indépendante, nous avons suivi la masse d'un flacon d'huile de silicone avec une balance de précision 0,01 g. Les résultats montrent que l'évaporation de l'huile de silicone à l'air ambiant est négligeable (la masse reste stable pendant une semaine).

Dans ce cas, les images de µTRX sont acquises avec un microtomographe de laboratoire (*RX-SOLUTIONS*, modèle *ULTRATOM*), équipé d'un tube à rayons X de *Hamamatsu* 160kV (modèle *L10711-23*). Le détecteur utilisé est de *Photonic Science* (modèle VHR). L'intensité et le voltage dans le tube à rayons X sont de 100 µA et 70 kV. Chaque image est le résultat de la moyenne de 6 images, dont le temps d'exposition pour chacune est de 0,25 s. La taille de voxel est de 1,7 µm. 1536 projections sont acquises pendant un scan hélicoïdal. Afin d'observer sur la totalité de l'échantillon qui mesure environ 20 mm de haut, 17 volumes de dimensions 1598 × 1370 × 587 voxels sont acquis puis reconstruits à l'aide du logiciel X-act reconstruction. La durée totale de scan est alors environ 18h.

2.5 Les hydrogels - un matériau modèle

2.5.1 Préparation des hydrogels

Les hydrogels sont un réseau tridimensionnel de polymère réticulé dans lequel l'eau est absorbée grâce aux groupes hydroxyles [AHMED, 2015; CALÓ et KHUTORYANSKIY, 2015]. En raison de leur haute capacité à absorber l'eau, leur porosité élevée et leur texture dite "molle", les hydrogels sont souvent utilisés pour simuler des matériaux biologiques ou naturels [CALÓ et KHUTORYANSKIY, 2015]. WHEELER et STROOCK [2008] ont d'abord utilisé un système microfluidique dans un hydrogel pour simuler la transpiration de la sève à la pression négative dans les plantes. Du fait que l'eau dans le système hydraulique des plantes est sous tension, elle est dans un état métastable où la transition liquide-vapeur se produit facilement, induisant la nucléation de bulles. Ce phénomène est défini comme le phénomène de cavitation chez les plantes [HOPKINS, 1999; WHEELER et STROOCK, 2008]. L'aspect intéressant des hydrogels est qu'ils forment un milieu poreux permettant à la fois le transport de l'eau liquide dans les macropores et la diffusion/évaporation d'eau dans les nanopores entre les chaînes polymères. C'est pourquoi VINCENT [2012] et BIENAIMÉ [2016] ont utilisé récemment les hydrogels pour étudier l'embolie dans des "arbres artificiels".

Dans cette thèse, nous avons préparé des hydrogels à base de polyéthylèneglycol (abrégé PEG). La formule est constituée des composants chimiques listés ci-dessous, tous provenant de *Sigma-Aldrich* :

— 2 g d'agent réticulant : poly(ethylene glycol) methyl ether methacrylate, Mn 500 en moyenne ;

— 0,17 g d'agent réticulant : poly(ethylene glycol) diacrylate, Mn 700 en moyenne ;

— 100 µL de solution aqueuse d'initiateur radical : persulfate d'ammonium, diluée à 5 wt% ;

— 100 µL de solution aqueuse de catalyseur : N,N,N',N'-Tetramethylethylenediamine, diluée à 5 wt % ;

— 6,18 g d'eau déminéralisée.

Pour fabriquer les hydrogels, on dissout d'abord les deux agents réticulant dans 6,18 g d'eau déminéralisée. On mélange soigneusement la solution afin que tous les polymères soient dissous sans introduire de bulles d'air. Puis la solution est mise dans une cloche sous vide pendant au moins 30 minutes pour enlever l'air dissous dans la solution. Ensuite on y ajoute l'initiateur radical et le catalyseur, toujours en mélangeant soigneusement pour ne pas y réintroduire de l'air. Une fois bien mélangée, la gélification va commencer au bout de 15 minutes.

Dans cette étude, la fabrication d'un canal cylindrique dans le gel est inspirée des travaux de ANDERSSON et collab. [2017]. On prélève de la solution de polymère dans une seringue de 1 mL avec un fil nylon inséré au centre de la seringue pour laisser un canal de section circulaire dans le gel après la polymérisation. Après 2h de repos à l'air ambiant, le gel est prêt à sortir de la seringue. On rince le gel avec de l'eau déminéralisée au moins

trois fois pour enlever les agents résiduels. Pour éviter au maximum d'abîmer la paroi du canal, le gel est immergé dans l'eau pendant au moins 12h puis le fil de nylon est retiré doucement, laissant un canal vide au milieu du gel. Les gels sont ensuite posés sur des lamelles de verre ou suspendus avec du fil de fer fin, puis ils sont conditionnés à 55 % HR ou 85 % HR jusqu'à l'équilibre. Un exemple des échantillons préparés est montré sur la Fig.2.41.

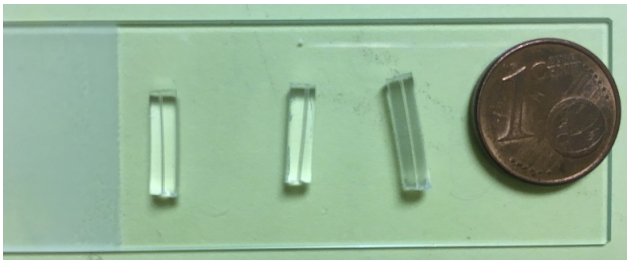
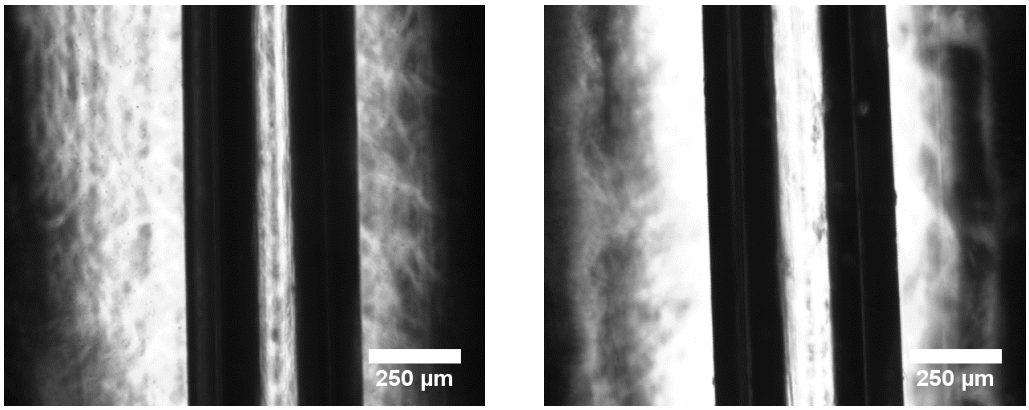


FIGURE 2.41 – Photographie de échantillons d'hydrogel préparés (comparés avec une pièce de 1 centime d'euro). Le canal capillaire est visible au milieu des gels.

Le diamètre de canaux de gel est mesuré à l'aide d'un microscope à lumière transmise (voir Fig.2.42). Les diamètres de canaux et les teneurs en eau dans le gel à différentes humidités relatives sont donnés dans le tableau 2.5 et le tableau 2.6.



(a) 55 %HR. (b) 85 % HR.

FIGURE 2.42 – Images de deux tuyaux de gel fabriqués avec un fil nylon de 0,7mm de diamètre, conditionnés à différentes humidités relatives

	fil 1 mm	fil 700 µm	fil 400 µm	fil 190 µm
55 %HR	716	472	263	141
85 %HR	\	505	287	\
saturé	\	\	501	271

TABLEAU 2.5 – Les diamètres de canaux dans les gels à différentes conditions.

	teneur en eau (wt%)	teneur en polymère (wt%)
55 %HR	8,1	91,9
85 %HR	25,1	74,9
saturé	87,2	12,8
après gélification	74,6	25,4

TABLEAU 2.6 – Les teneurs en eau dans les hydrogels à différentes conditions.

2.5.2 Tests d'imbibition

Les tests d'imbibition pour les hydrogels diffèrent de ceux utilisés pour les échantillons de bois. Contrairement aux échantillons de bois, les mesures de masses sont difficiles pour les hydrogels, d'une part à cause de leur faible masse initiale (de l'ordre de 0,1 g), et d'autre part, à cause de la déformation rapide et importante due à l'absorption d'eau, la poussée d'Archimède varie de manière significative et imprévisible en fonction du temps.

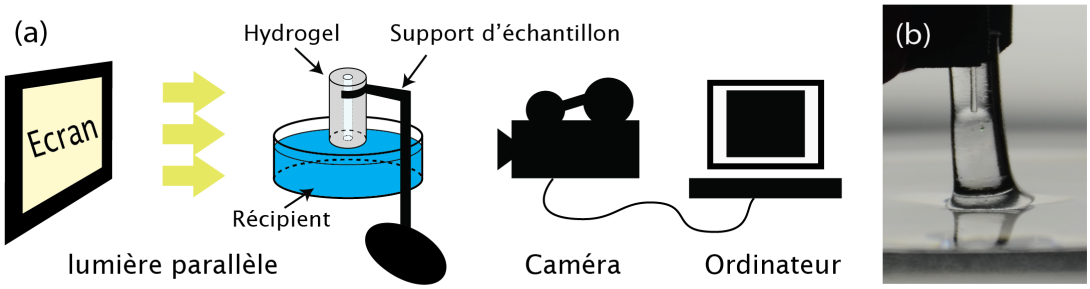


FIGURE 2.43 – **(a)** Dispositif expérimental pour les tests d'imbibition sur les échantillons d'hydrogels. **(b)** Photographie d'un échantillon d'hydrogel imbibé.

De ce fait, nous étudions la remontée capillaire dans des canaux d'hydrogels par analyse d'images. Les hydrogels sont parfaitement transparents, ce qui rend l'analyse d'images possible. Le dispositif expérimental est présenté sur la Fig.2.43. Un écran lumineux émet de la lumière parallèle à travers l'échantillon, et une caméra enregistre l5 images par seconde pendant l'imbibition. Nous traitons ensuite les images à l'aide d'ImageJ.

2.6 Références

AHMED, E. M. 2015, «Hydrogel : Preparation, characterization, and applications : A review», *Journal of Advanced Research*, vol. 6, nº 2, doi :10.1016/j.jare.2013.07.006, p. 105–121, ISSN 20901232. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.jare.2013.07.006. 104

ALKAN, S., Y. L. ZHANG et F. LAM. 2007, «Moisture distribution changes and wetwood behavior in subalpine fir wood during drying using high X-ray energy industrial CT scanner», *Drying Technology*, vol. 25, nº 1-3, doi :Doi10.1080/07373930601184023, p. 483–488, ISSN 0737-3937. 99

ALMEIDA, G., S. GAGNÉ et R. E. HERNÁNDEZ. 2007, «A NMR study of water distribution in hardwoods at several equilibrium moisture contents», *Wood Science and Technology*, vol. 41, nº 4, doi :10.1007/s00226-006-0116-3, p. 293–307, ISSN 00437719. 80, 81

ALMEIDA, G., S. LECLERC et P. PERRÉ. 2008, «NMR imaging of fluid pathways during drainage of softwood in a pressure membrane chamber», *International Journal of Multiphase Flow*, vol. 34, nº 3, doi :10.1016/j.ijmultiphaseflow.2007.10.009, p. 312–321, ISSN 03019322. 81

ANDERSSON, J., A. STRÖM, T. GEBÄCK et A. LARSSON. 2017, «Dynamics of capillary transport in semi-solid channels», *Soft Matter*, vol. 13, nº 14, doi :10.1039/C6SM02305C, p. 2562–2570, ISSN 1744-683X. URL http://xlink.rsc.org/?DOI=C6SM02305C. 104

ARAUJO, C. D., S. AVRAMIDIS et A. L. MACKAY. 1994, «Behaviour of Solid Wood and Bound Water as a Function of Moisture Content. A Proton Magnetic Resonance Study», *Holzforschung*, vol. 48, doi :10.1515/hfsg.1994.48.1.69, p. 69–74. 81

ARAUJO, C. D., A. L. MACKAY, J. R. T. HAILEY et K. P. WHITTALL. 1992, «Proton magnetic resonance techniques for characterization of water in wood : application to white spruce», *Wood Science and Technology*, vol. 113, p. 101–113. 81

BIENAIMÉ, D. 2016, *Embolie dans les plantes*, thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes. 104

BONNET, M. 2017, *Analyse multi-échelle du comportement hygromécanique du bois : Mise en évidence par relaxométrie du proton et mesures de champs volumiques de l' influence de l 'hétérogénéité au sein du cerne*, thèse de doctorat, Université Paris-Est. 99

BONNET, M., D. COURTIER-MURIAS, P. FAURE, S. RODTS et S. CARE. 2017, «NMR determination of sorption isotherms in earlywood and latewood of Douglas fir. Identification of bound water components related to their local environment», *Holzforschung*, vol. 0, nº 0, doi :10.1515/hf-2016-0152, ISSN 1437-434X. URL http://www.degruyter.com/view/j/hfsg.ahead-of-print/hf-2016-0152/hf-2016-0152.xml. 81

BROWNSTEIN, K. R. et C. E. TARR. 1979, «Importance of classical diffusion in nmr studies of water in biological cells», *Phys. Rev. A*, vol. 19, doi :10.1103/PhysRevA.19.2446, p. 2446–2453. URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.19.2446. 84, 85

CALÓ, E. et V. V. KHUTORYANSKIY. 2015, «Biomedical applications of hydrogels : A review of patents and commercial products», *European Polymer Journal*, vol. 65, doi :10.1016/j.eurpolymj.2014.11.024, p. 252–267, ISSN 00143057. 104

CARLQUIST, S. 2012, «How wood evolves : a new synthesis», *Botany*, vol. 90, nº 10, doi : 10.1139/b2012-048, p. 901–940, ISSN 1916-2790. 65

CARR, H. Y. et E. M. PURCELL. 1954, «Effects of diffusion on free precession in nuclear magnetic resonance experiments», *Phys. Rev.*, vol. 94, doi :10.1103/PhysRev.94.630, p. 630–638. URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.94.630. 86

COX, J., P. J. MCDONALD et B. A. GARDINER. 2010, «A study of water exchange in wood by means of 2D NMR relaxation correlation and exchange», *Holzforschung*, vol. 64, nº 2, doi :10.1515/HF.2010.036, p. 259–266, ISSN 00183830. 81

DVINSKIKH, S. V., M. HENRIKSSON, A. L. MENDICINO, S. FORTINO et T. TORATTI. 2011, «NMR imaging study and multi-Fickian numerical simulation of moisture transfer in Norway spruce samples», *Engineering Structures*, vol. 33, nº 11, doi :10.1016/j.engstruct.2011.04.011, p. 3079–3086, ISSN 01410296. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.engstruct.2011.04.011. 81

GEZICI-KOÇ, Ö., S. J. F. ERICH, H. P. HUININK, L. G. J. VAN DER VEN et O. C. G. ADAN. 2017, «Bound and free water distribution in wood during water uptake and drying as measured by 1D magnetic resonance imaging», *Cellulose*, vol. 24, doi :10.1007/s10570-016-1173-x, p. 535–553, ISSN 0969-0239. URL http://link.springer.com/10.1007/s10570-016-1173-x.

HAHN, E. L. 1950, «Spin echoes», *Phys. Rev.*, vol. 80, doi :10.1103/PhysRev.80.580, p. 580–594. URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.80.580. 86

HAMEURY, S. et M. STERLEY. 2006, «Magnetic resonance imaging of moisture distribution in Pinus sylvestris L. exposed to daily indoor relative humidity fluctuations», *Wood Material Science and Engineering*, vol. 1, nº December 2013, doi :10.1080/17480270601150578, p. 116–126, ISSN 1748-0272. URL http://dx.doi.org/10.1080/17480270601150578. 81

HOPKINS, W. 1999, *Introduction to plant physiology*, John Wiley and Sons, New York. 104

JAVED, M. A., P. M. KEKKONEN, S. AHOLA et V.-V. TELKKI. 2014, «Magnetic resonance imaging study of water absorption in thermally modified pine wood», *Holzforschung*, , nº x, doi :10.1515/hf-2014-0183, ISSN 1437-434X. 82

JOHANSSON, J. et G. KIFETEW. 2010, «CT-scanning and modelling of the capillary water uptake in aspen, oak and pine», *European Journal of Wood and Wood Products*, vol. 68, nº 1, doi :10.1007/s00107-009-0359-4, p. 77–85, ISSN 00183768. 99

JONES, M., P. S. APTAKER, J. COX, B. A. GARDINER et P. J. MCDONALD. 2012, «A transportable magnetic resonance imaging system for in situ measurements of living trees : The Tree Hugger», *Journal of Magnetic Resonance*, vol. 218, doi :10.1016/j.jmr.2012.02.019, p. 133–140, ISSN 10907807. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.jmr.2012.02.019. 82

KEITA, E. 2014, *Physique du séchage des sols et des matériaux de construction*, thèse de doctorat, Université Paris-Est. 94, 95

KEKKONEN, P. M., A. YLISASSI et V. V. TELKKI. 2014, «Absorption of water in thermally modified pine wood as studied by nuclear magnetic resonance», *Journal of Physical Chemistry C*, vol. 118, nº 4, doi :10.1021/jp411199r, p. 2146–2153, ISSN 19327447. 82

KING, A., N. GUIGNOT, P. ZERBINO, E. BOULARD, K. DESJARDINS, M. BORDESSOULE, N. LECLERQ, S. LE, G. RENAUD, M. CERATO, M. BORNERT, N. LENOIR, S. DELZON, J. P. PERRILLAT, Y. LEGODEC et J. P. ITIÉ. 2016, «Tomography and imaging at the PSICHE beam line of the SOLEIL synchrotron», *Review of Scientific Instruments*, vol. 87, nº 9, doi :10.1063/1.4961365, ISSN 10897623. 102

KOUBAA, A., S. T. ZHANG et S. MAKNI. 2002, «Defining the transition from earlywood to latewood in black spruce based on intra-ring wood density profiles from X-ray densitometry», *Annals of Forest Science*, vol. 59, doi :10.1051/forest, p. 511–518, ISSN 1286-4560. URL http://www.edpsciences.org/10.1051/forest:2002035. 99

LABBÉ, N., B. DE JÉSO, J.-C. LARTIGUE, G. DAUDÉ, M. PÉTRAUD et M. RATIER. 2006, «Time-domain 1H NMR characterization of the liquid phase in greenwood», *Holzforschung*, vol. 60, nº 3, doi :10.1515/HF.2006.043, p. 265–270, ISSN 0018-3830. URL http://www.degruyter.com/view/j/hfsg.2006.60.issue-3/hf.2006.043/hf.2006.043.xml. 81

LABBÉ, N. U. B. I. 2002, *MISE AU POINT D'UNE NOUVELLE MÉTHODE DE DOSAGE DE L'EAU DANS LE BOIS ET CARACTÉRISATION DES COMPOSÉS ORGANIQUES DU PIN MARITIME PAR RÉSONANCE MAGNÉTIQUE NUCLÉAIRE DOMAINE TEMPS*, thèse de doctorat, UNIVERSITÉ BORDEAUX I. 81, 90

LI, W. et J. V. D. BULCKE. 2016, «Investigating water transport in MDF and OSB using a gantry-based X-ray CT scanning system», *Wood Science and Technology*, doi : 10.1007/s00226-016-0855-8, ISSN 1432-5225. URL http://dx.doi.org/10.1007/s00226-016-0855-8. 99

MAZELA, B., J. KOWALCZUK, I. RATAJCZAK et K. SZENTNER. 2014, «Moisture content (MC) and multinuclear magnetic resonance imaging (MRI) study of water absorption effect on wood treated with aminofunctional silane», *European Journal of Wood and Wood Products*, vol. 72, nº 2, doi :10.1007/s00107-013-0768-2, p. 243–248, ISSN 00183768. 82

MEDER, R., S. L. CODD, R. A. FRANICH, P. T. CALLAGHAN et J. M. POPE. 2003, «Observation of anisotropic water movement in Pinus Radiata D. Don sapwood above fiber saturation using magnetic resonance micro-imaging», *Holz als Roh - und Werkstoff*, vol. 61, nº 4, doi :10.1007/s00107-003-0400-y, p. 251–256, ISSN 00183768. 81

MEIBOOM, S. et D. GILL. 1958, «Modified spin-echo method for measuring nuclear relaxation times», *Review of Scientific Instruments*, vol. 29, nº 8, doi :10.1063/1.1716296, p. 688–691. 86

MENON, R. S., A. L. MACKAY, S. FLIBOTTE et J. R. T. HAILEY. 1989, «Quantitative separation of NMR images of water in wood on the basis of T2», *Journal of Magnetic Resonance (1969)*, vol. 82, nº 1, doi :10.1016/0022-2364(89)90184-4, p. 205–210, ISSN 00222364. 81, 89

MENON, R. S., A. L. MACKAY, J. R. HAILEY, M. BLOOM, A. E. BURGESS et J. S. SWANSON. 1987, «An NMR determination of the physiological water distribution in wood during drying», *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 33, nº 4, doi :10.1002/app.1987.

070330408, p. 1141–1155, ISSN 10974628. URL http://dx.doi.org/10.1002/app.1987.070330408. 81

MIRONE, A., E. BRUN, E. GOUILLART, P. TAFFOREAU et J. KIEFFER. 2014, «The PyHST2 hybrid distributed code for high speed tomographic reconstruction with iterative reconstruction and a priori knowledge capabilities», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 324, doi :10.1016/j.nimb.2013.09.030, p. 41–48, ISSN 0168583X. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.09.030. 102

PASSARINI, L., C. MALVEAU et R. E. HERNÁNDEZ. 2014, «Water State Study of Wood Structure of Four Hardwoods Below Fiber Saturation Point with Nuclear Magnetic Resonance», *Wood and Fiber Science*, vol. 46, nº 4, p. 480–488, ISSN 0735-6161. URL http://swst.metapress.com/index/U53138117K30W358.pdf. 81

PHILIPPOT, S., J. KORB, D. PETIT et H. ZANNI. 1998, «Analysis of microporosity and setting of reactive powder concrete by proton nuclear relaxation», *Magnetic Resonance Imaging*, vol. 16, nº 5, doi :https://doi.org/10.1016/S0730-725X(98)00063-0, p. 515 – 519, ISSN 0730-725X. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0730725X98000630. 92

PURCELL, E. M., H. C. TORREY et R. V. POUND. 1946, «Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid», *Phys. Rev.*, vol. 69, doi :10.1103/PhysRev.69.37, p. 37–38. URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.69.37. 80

SALIN, J. G. 2008, «Almost all wooden pieces have a damaged surface layer - impact on some properties and quality», dans *Conference COST E53, 29-30 October 2008*, Delft, The Netherlands. 95, 97

SANDBERG, K. et J. G. SALIN. 2012, «Liquid water absorption in dried Norway spruce timber measured with CT scanning and viewed as a percolation process», *Wood Science and Technology*, vol. 46, nº 1-3, doi :10.1007/s00226-010-0371-1, p. 207–219, ISSN 00437719. 99

SCHNEIDER, C., W. RASBAND et K. ELICEIRI. 2012, «NIH Image to ImageJ : 25 years of image analysis», *Nature methods*, vol. 9, p. 671–675. 71

SEGERHOLM, I. et J. CLAESSON. 2008, «Unexpected experimental results for capillary suction in wood : Analysis on the fibre level», *Wood Material Science and Engineering*, vol. 3, nº 3-4, doi :10.1080/17480270902909466, p. 109–118, ISSN 1748-0272. URL http://dx.doi.org/10.1080/17480270902909466. 95

STEPPE, K., V. CNUDDE, C. GIRARD, R. LEMEUR, J. P. CNUDDE et P. JACOBS. 2004, «Use of X-ray computed microtomography for non-invasive determination of wood anatomical characteristics», *Journal of Structural Biology*, vol. 148, nº 1, doi :10.1016/j.jsb.2004.05.001, p. 11–21, ISSN 10478477. 99

TELKKI, V. V. 2012, «Wood characterization by NMR & MRI of fluids», *eMagRes*, vol. 1, nº 1, doi :10.1002/9780470034590.emrstm1298, p. 215–222, ISSN 20556101. 81

TROUY, M.-C. 2015, *Anatomie du bois*, quae éd., Synthèses. 65

VINCENT, O. 2012, *Dynamique de bulles de cavitation dans de l ' eau micro-confinée sous tension Application à l'étude de l'embolie dans les arbres*, thèse de doctorat, Université de Grenoble. 104

WHEELER, E. A. 2011, «InsideWood - a web resource for hardwood anatomy», *IAWA Journal*, vol. 32, nº 2, p. 199–211. 71

WHEELER, T. D. et A. D. STROOCK. 2008, «The transpiration of water at negative pressures in a synthetic tree.», *Nature*, vol. 455, nº 7210, doi :10.1038/nature07226, p. 208–12, ISSN 1476-4687. 104

WIBERG, P. et T. J. MOREN. 1999, «Moisture flux determination in wood during drying above fibre saturation point using CT-scanning and digital image processing», *Holz Als Roh-Und Werkstoff*, vol. 57, nº 2, doi :10.1007/s001070050029, p. 137–144, ISSN 0018-3768. 99

WINDT, C. W., F. J. VERGELDT, P. A. DE JAGER et H. VAN AS. 2006, «MRI of long-distance water transport : A comparison of the phloem and xylem flow characteristics and dynamics in poplar, castor bean, tomato and tobacco», *Plant, Cell and Environment*, vol. 29, nº 9, doi :10.1111/j.1365-3040.2006.01544.x, p. 1715–1729, ISSN 01407791. 82

XU, Y., C. D. ARAUJO, A. L. MACKAY et K. P. WHITTALL. 1996, «Proton Spin – Lattice Relaxation in Wood — T1 Related to Local Specific Gravity Using a Fast -Exchange Model», *J. Magn. Res. B*, vol. 110, nº 0007, p. 55–64. 81

Chapitre 3

Imbibition capillaire dans le bois de feuillu

Sommaire

3.1 Tests d'imbibition macroscopiques 115
3.1.1 Imbibition d'eau dans quatre essences de feuillu 115
3.1.1.1 Courbes d'imbibition 115
3.1.1.2 Imbibition de l'eau dans le bois de feuillus : un phénomène paradoxal? 117
3.1.2 Imbibition de l'huile dans le peuplier 118
3.1.3 Imbibition d'eau dans le peuplier 122
3.1.3.1 Influence des paramètres 123
3.1.3.2 Mesures de déformations 126
3.1.4 Discussion et conclusion 127
3.2 Observations par RMN et IRM 128
3.2.1 Mesures du temps de relaxation 128
3.2.1.1 Calibration du signal RMN 128
3.2.1.2 Distribution de T_2 129
3.2.1.3 Carte 2D T_1-T_2 131
3.2.1.4 Suivi d'imbibition par mesures de T_2 132
3.2.2 Observations par images IRM 134
3.2.3 Profils d'huile de silicone 135
3.2.4 Profils d'eau liée et d'eau libre 136
3.2.5 Discussions et Conclusion 142
3.3 Observations par microtomographie aux rayons X 143
3.3.1 Protocole d'observation 143
3.3.2 Premières observations dans le plan "RT" 144
3.3.3 Formes des interfaces eau-air 147
3.3.3.1 Zone B : immersion totale 147
3.3.3.2 Zone A : imbibition longitudinale 147
3.3.4 Dynamique des interfaces planes 150

3.3.5 Pénétration dans les fibres 152
3.3.6 Le cas de l'huile de silicone 153
3.3.7 Discussions et Conclusion 155
3.4 Proposition du mécanisme de transferts d'eau dans le bois de feuillu . . 156
3.5 Conclusion du chapitre 157
3.6 Annexe : Modélisation de la diffusion d'eau liée 158
3.7 Références 160

Nous avons pu voir dans les deux premiers chapitres que la conduction de la sève dans les feuillus est assurée par les vaisseaux qui peuvent être considérés comme des tubes capillaires parallèles. Sous cette condition, il semble que la perméabilité du matériau puisse être estimée à partir de la structure et le modèle de Washburn puisse être utiliser pour décrire les comportements du bois pendant l'imbibition. Cependant, nous avons également pu voir que l'imbibition d'eau dans le bois est un phénomène complexe, qui implique à la fois la pénétration d'eau libre et la diffusion d'eau liée.

Dans un premier temps, les tests d'imbibition réalisés dans cette étude sont présentés et analysés. Le test d'imbibition, qui consiste simplement à mettre en contact un échantillon avec du liquide pendant certain temps, est une méthode classique et robuste pour étudier le phénomène d'imbibition dans un milieu poreux. Les résultats avec l'eau sont présentés et analysés, puis ils sont comparés avec ceux avec l'huile de silicone. Puis dans un deuxième temps, les profils d'eau liée et d'eau libre mesurés à l'aide de l'IRM sont présentés. Ils nous permettent non seulement de comprendre l'origine de la différence significative entre l'huile et l'eau en imbibition, mais aussi d'étudier de façon quantitative les comportements de l'eau dans différents états. Enfin, nous étudierons de manière plus approfondie le comportement des interfaces liquide-air formées au cours de l'imbibition par microtomographie aux rayons X. Nous proposons un mécanisme pour décrire le phénomène d'imbibition d'eau dans le bois à la fin du chapitre. Une annexe est fournie à la fin du chapitre sur la modélisation de la diffusion d'eau liée.

3.1 Tests d'imbibition macroscopiques

Le but de cette partie est de présenter les résultats obtenus par des expériences macroscopiques, puis de les analyser quantitativement en nous appuyant sur le modèle de Washburn. Nous allons voir, contrairement au cas des liquides apolaires, que le modèle de Washburn qui est souvent utilisé pour décrire le phénomène d'imbibition dans un milieu poreux rigide et non-absorbant, ne s'applique pas dans le cas de l'imbibition d'eau dans le bois.

3.1.1 Imbibition d'eau dans quatre essences de feuillu

Ce chapitre commence par un cas général : le suivi d'imbibition d'eau dans quatre essences de feuillu : le peuplier (feuillu à pores diffus ou à zone semi-diffuse,) le charme (feuillu à pores diffus), le chêne et le frêne (feuillus à zone initiale poreuse). Les tests d'imbibition sont réalisés avec la méthode par pesées présentée dans la section 2.2.1.1, selon la direction longitudinale.

3.1.1.1 Courbes d'imbibition

L'évolution de la quantité d'eau absorbée dans les échantillons en fonction du temps est d'abord analysée. Avec notre dispositif (voir Fig.2.11), nous pouvons réaliser le suivi de masse en fonction du temps. Nous avons déjà vu dans les chapitres précédents que le bois a une structure fortement hétérogène. La structure interne et la porosité pourraient varier d'un cerne à l'autre, dû à la variabilité de croissance de l'arbre qui dépend

des conditions climatiques pendant les saisons de végétation. La section de nos échantillons 4(R) × 2(T)cm^2 contenant 2-4 cernes nous permet d'éliminer l'effet de l'hétérogénéité intercerne.

La première approche pour quantifier le phénomène d'imbibition consiste à définir une hauteur caractéristique $h^* = \Omega/S$, avec Ω le volume d'eau absorbée et S la section de l'échantillon. Les résultats expérimentaux sur les quatre essences de feuillu sont montrés sur la Fig.3.1.

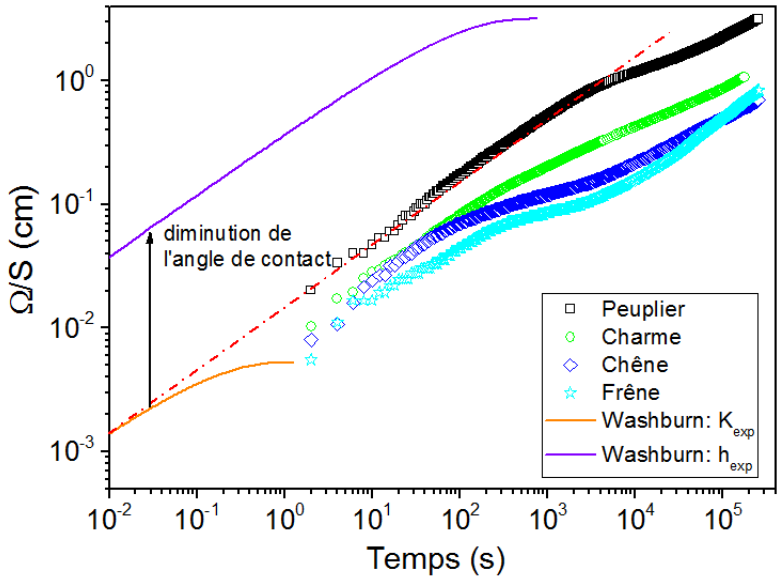


FIGURE 3.1 – Courbes d'imbibition sur les feuillus étudiés : volume d'eau absorbé par unité de section (Ω/S) en fonction du temps. La ligne rouge pointillée est un fit linéaire qui correspond à $h^* = \sqrt{K^* t}$ avec $K^* = 1,6 \times 10^{-7} m^2/s$. Les deux lignes continues correspondent à la prédiction par le modèle de Washburn : ligne orange, modèle de Washburn basé sur la valeur de K expérimentale ($\theta \approx 90°$) ; ligne violette, modèle de Washburn basé sur la hauteur maximale estimée avec les données expérimentales ($\theta \approx 72°$).

Nous avons vu dans la section.1.1.1.3 que selon la loi de Washburn, la montée d'eau dans un tube capillaire cylindrique est une fonction linéaire de la racine carrée du temps. L'équation.1.14 peut être simplifiée comme $h = \sqrt{Kt}$, avec le facteur $K = \gamma R cos(\theta)/2\mu$. Supposons que les échantillons de peuplier sont principalement composés de conduits capillaires parallèles avec ε la porosité apparente du milieu. Bien que les conduits (vaisseaux) soient entourés de petites cavités (fibres), pour l'instant nous considérons que les fibres sont fermées et sans communication entre elles. Dans ces conditions, la vraie hauteur de la montée de l'eau h au sein d'un tube s'exprime comme la hauteur apparente divisée par la porosité des vaisseaux : $h = \Omega/S\varepsilon = h^*/\varepsilon$. Dans le premier régime capillaire lorsque la gravité est négligeable, nous avons ainsi $h^* = \sqrt{K^* t}$ avec $K^* = K\varepsilon^2$ pour la remontée capillaire dans un tel milieu poreux.

Regardons maintenant les courbes d'imbibition mesurées avec les quatre essences de feuillu (voir Fig.3.1). Dans un premier temps, nous pouvons constater que les 4 essences

semblent avoir un comportement similaire à un processus de Washburn : en exprimant les résultats en échelle logarithmique, les courbes présentent une pente proche à 0,5 (parallèles à la ligne rouge pointillée sur la Fig.3.1). Puis sur des temps longs, l'imbibition ralentit et les courbes s'éloignent de la courbe de pente 0,5. En revanche, aucun plateau n'est observé et toutes les courbes semblent continuer à croître pendant la durée de l'expérience (typiquement 3 jours).

Nous pouvons également obtenir des informations concernant la structure des échantillons.

Les deux feuillus à zone initiale poreuse, le chêne et le frêne, sont les moins perméables parmi les essences étudiées et ont un comportement similaire : le régime similaire à Washburn ne dure qu'une centaine de minutes puis l'imbibition ralentit significativement. Cette observation sur le chêne et le frêne n'est pas étonnante, puisque la présence de thylles qui bouchent les vaisseaux est courante chez ces deux espèces. C'est une des raisons pour lesquelles le chêne est souvent utilisé pour fabriquer des tonneaux de vin.

Les courbes du peuplier et du charme sont aussi similaires entre elles, ce qui s'explique par la similitude de leur structure. Nous avons vu dans le chapitre 2 que chez les deux espèces les vaisseaux sont très proches de conduits cylindriques idéaux (sans présence de thylles, perforation simple, etc), ce qui explique que les courbes d'imbibition ressemblent plus à une imbibition de type « Washburn » que pour le chêne et le frêne. Pourtant le peuplier montre une perméabilité plus élevée, probablement grâce à son rayon caractéristique des vaisseaux (55 μm chez le peuplier par rapport à 30 μm chez le charme) et au volume des vaisseaux (40% chez le peuplier par rapport à 30% chez le charme), cf. Section.2.1.1.5 [1].

Dans les sections suivantes, nous allons analyser de façon plus quantitative les données du peuplier.

3.1.1.2 Imbibition de l'eau dans le bois de feuillus : un phénomène paradoxal ?

Nous avons vu dans la section.1.1.1.3 que selon l'équation.1.15, après le premier régime capillaire, la montée capillaire h ralentit sous l'action de la gravité et finalement tend vers un plateau h_{max}. Nous pouvons établir la relation suivante à partir de l'équilibre entre les deux forces :

$$h_{max} = \frac{2\gamma cos\theta}{\rho g R} = \frac{4\mu K}{\rho g R^2} \tag{3.1}$$

Examinons maintenant la valeur de ces coefficients en comparant le modèle avec la courbe d'imbibition du peuplier sur la Fig.3.1. Avec la pente donnée par la courbe d'imbibition du peuplier, nous obtenons directement la valeur de $K^* = 1,6 \times 10^{-7} m^2/s$. Uti-

1. Nos données expérimentales montrent qu'en pratique, nous ne pouvons déduire la perméabilité théorique seulement à partir de la porosité et de la taille de vaisseaux connues. Beaucoup de facteurs incontrôlables (croissance de champignons, attaques par des insectes, etc) pourraient altérer la perméabilité d'un échantillon donné. Il a été observé pendant ces travaux de thèse (par IRM ou par images de tomographie aux rayons X) que dans quelques échantillons de peuplier, il y avait de la matière inconnue qui bouchait les vaisseaux. La perméabilité expérimentale est réduite par deux par rapport à celle des échantillons de peuplier « intacts » et elle est finalement approximativement équivalente à celle du charme.

lisant la porosité apparente des vaisseaux $\varepsilon = 0,4$ (voir Section.2.1.1.5) nous obtenons $K = 1 \times 10^{-6} m^2/s$. Prenons $\gamma = 0,07\ mPa.s$ pour l'eau et $R = 55\ \mu m$ pour le rayon des vaisseaux. Selon l'équation.3.1 la valeur de K implique alors un angle de contact θ très proche de 90° ($cos\theta \approx 5 \times 10^{-4}$). Cela signifie un très mauvais mouillage, et le plateau de la quantité d'eau absorbée Ω/S devrait se situer autour de $5 \times 10^{-3} cm$ (voir Fig.3.1). Ceci est en forte contradiction avec les données expérimentales qui montrent que l'eau pénètre dans le peuplier au-delà de 3 cm.

Que se passe-t-il alors si nous nous appuyons sur l'ordre de grandeur de la hauteur du plateau obtenue expérimentalement? Même si pendant la durée d'expérience nous n'avons pas en réalité observé de plateau, nous pouvons en déduire la valeur maximale de l'angle de contact apparent en prenant la valeur maximale à la fin de l'expérience (3 jours). En effet, dans le cas du peuplier, pour que l'eau puisse pénétrer de $3cm$, il faut que l'angle de contact soit inférieur à 72°. Comme nous avons $h_{max} \propto K$ selon l'équation.3.1, le modèle de Washburn prédit alors une dynamique de pénétration beaucoup plus rapide que celle observée en expérience : le rapport des deux h_{max} (expérimentale et théorique) donne $3 \div 5 \times 10^{-3}$, soit une dynamique théorique 600 fois plus rapide que la courbe d'imbibition du peuplier (voir la ligne violette sur la Fig.3.1).

En conclusion, nous avons observé avec les courbes d'imbibition des feuillus, soit une imbibition trop lente par rapport à la hauteur de pénétration atteinte, soit une imbibition avec un angle de contact trop petit par rapport à la dynamique. Il semble que, selon le modèle de Washburn, l'imbibition dans les feuillus présente un phénomène paradoxal.

Essayons maintenant d'analyser la situation en tenant compte de la structure du bois. Certes, les vaisseaux sont en réalité entourés de fibres dont le volume n'est pas négligeable, souvent comparable parfois même supérieur à celui des vaisseaux. Supposant que le volume des vaisseaux et celui des fibres sont équivalents, la pénétration d'eau dans les lumens des fibres induirait alors un taux d'imbibition deux fois plus faible que celui prévu, un facteur trop faible pour expliquer l'écart actuel de presque trois ordres de grandeur.

Nous pouvons également supposer une perte de charge importante due aux résistances structurales dans les vaisseaux (ponctuations, perforations, extrémités des vaisseaux, etc) pour que la loi de Poiseuille ne s'applique pas. Cependant, ceci semble en contradiction avec nos observations (voir Section.2.1.1.5) qui montrent que les vaisseaux ressemblent bien à des tubes idéaux.

Pour tenter de comprendre le problème, nous allons étudier par la suite l'imbibition avec des fluides apolaires dans des échantillons de peuplier, qui *a priori* n'interagissent pas avec le bois.

3.1.2 Imbibition de l'huile dans le peuplier

Deux méthodes décrites dans la section 2.2 sont utilisées pour étudier l'imbibition de l'huile dans des échantillons de peuplier : (a) mesures par pesées, (b) mesures sur des gouttes. Nous avons utilisé des huiles de silicone avec différentes viscosités (20, 125, 350

et 500 mP$a.s$) ainsi que du dodécane, qui a une viscosité de 1,3 mP$a.s$ proche de celle de l'eau mais une tension superficielle proche de celle des huiles de silicone (voir Tableau.2.2).

Afin d'éliminer l'effet de la viscosité et de faciliter la comparaison entre les différents fluides étudiés, l'équation.1.14 peut être réécrite sous la forme :

$$\frac{\Omega}{S} = \sqrt{\frac{4k\varepsilon\gamma cos\theta}{R}} \cdot \sqrt{\frac{t}{\mu}} = \lambda\sqrt{\frac{t}{\mu}} \tag{3.2}$$

On définit ici λ comme un nouveau facteur devant $\sqrt{t/\mu}$, qui est alors indépendant de la viscosité du fluide.

Avant de commencer l'analyse des résultats, il faut signaler que nous n'avons pas observé de déformation pendant l'imbibition de l'huile, ce qui confirme l'hypothèse que les fluides apolaires, sans groupements -OH, n'interagissent pas avec le bois. Les huiles "voient" donc le bois comme un milieu poreux rigide et non-absorbant.

La Fig.3.2.a montre les courbes d'imbibition obtenues par pesées. Trois liquides sont présentés sur cette figure, deux huiles de silicone 47V20 et 47V350 et le dodécane. Nous pouvons constater que les trois courbes se superposent parfaitement. Cela confirme la validité de l'équation.3.2 et suggère que le terme de force capillaire $\gamma cos\theta$ est similaire pour les trois liquides. Par ailleurs, la superposition des courbes montre la répétabilité des expériences avec une incertitude de l'ordre de 20%. Comme pour les essais d'imbibition avec l'eau (voir Fig.3.1), nous pouvons également observer un régime en racine carrée du temps sur les courbes d'huiles sur des temps courts.

Une comparaison entre l'huile de silicone 47V20 et l'eau est présentée sur l'insert de la Fig.3.2.a. Bien que l'huile 47V20 soit 20 fois plus visqueuse que l'eau, elle pénètre dans le bois beaucoup plus rapidement que l'eau : au bout d'une heure, la pénétration de l'huile 47V20 s'est presque arrêtée.

Afin d'obtenir plus d'informations aux temps courts, des observations sur des gouttes avec une caméra qui enregistre 15 images par seconde sont réalisées (voir Section.2.2.1.3). Les résultats avec les huiles de silicone dont la viscosité varie de 20 à 500 mP$a.s$ sont présentés sur la Fig.3.2.b.

Tout d'abord, la figure en insert de la Fig.3.2.b. révèle la simple relation entre la dynamique d'imbibition et la viscosité : plus le fluide est visqueux, plus il pénètre lentement dans le bois. Si maintenant le volume de liquide imbibé est tracé en fonction de t/μ, nous pouvons alors observer que pendant la durée expérimentale (ici moins d'une minute), toutes les courbes suivent une loi de $\sqrt{t}$ comme la prédiction de la loi de Washburn et elles se superposent pour former une courbe unique (voir Fig.3.2.b.).

Notons que cette technique des gouttes déposées sur la surface d'un milieu poreux est tout particulièrement adapté au bois. Dans le cas d'un milieu poreux homogène, les transferts latéraux peuvent être non négligeables. Dans le cas du bois, grâce à l'orientation des vaisseaux et des fibres, la pénétration du fluide a lieu essentiellement dans la direction longitudinale. Ainsi, la description théorique pour l'imbibition capillaire en 1D

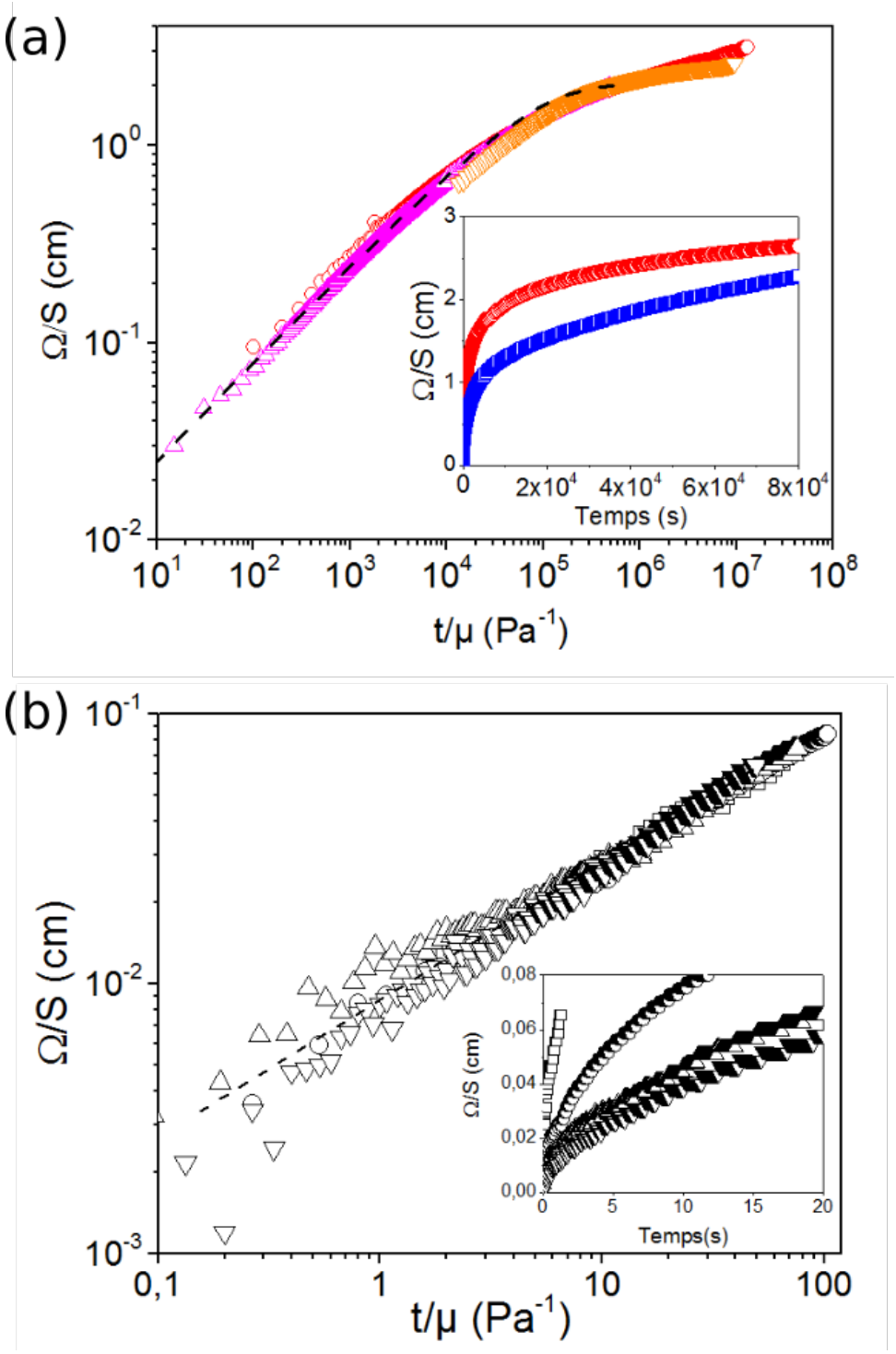


FIGURE 3.2 – Courbes d'imbibition pour les huiles de silicone : (a) courbes d'imbibition en fonction de t/μ par pesées en échelle logarithmique. Les huiles de silicone 47V20 (◯ rouge) et 47V350 (△ magenta) ; le dodécane (▽ orange). La ligne pointillée représente la prédiction du modèle de Washburn (avec $h^*_{max} = 2\ cm$). En insert : courbes d'imbibition en fonction du temps en échelle linéaire pour l'huile de silicone 47V20 (cercles rouges) et pour l'eau (carrés bleus). (b) courbes d'imbibition en fonction de t/μ par mesures sur des gouttes. ◯ : 47V20, □ : 47V125, △ : 47V350, ▽ : 47V500. En insert, les mêmes courbes en fonction du temps en échelle linéaire. La ligne pointillée est une pente de 0,5.

est valide.

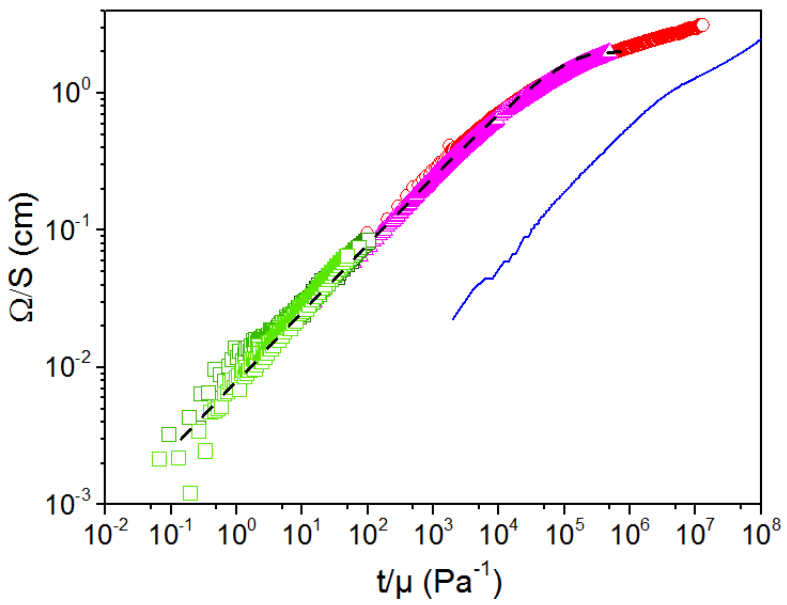


FIGURE 3.3 – Courbes d'imbibition pour les huiles de silicone montrant une courbe unique pour les deux méthodes de mesure. Pour les mesures par pesées : huile de silicone 47V20 (cercles rouges) et 47V350 (triangles magentas). Pour les mesures sur des gouttes : carrés verts, de couleur plus foncée à moins foncée : 47V20, 47V125, 47V350 et 47V500. La courbe d'imbibition d'eau dans un échantillon de peuplier (déjà montrée sur la Fig.3.1) est présentée ici en ligne bleue pour comparaison avec les huiles. Ligne pointillée : le modèle de Washburn.

L'ensemble des résultats d'imbibition avec les huiles de silicone est présenté sur la Fig.3.3. Toutes les données, indépendantes de la viscosité du fluide et de la méthode utilisée, se superposent. Cela met en évidence la validité des mesures par dépôt de gouttes. La courbe unique, qui représente la dynamique d'imbibition sur une échelle de temps de plus de 6 ordres de grandeur, nous permet d'analyser le comportement des huiles de manière plus approfondie.

De manière générale, on peut voir que les courbes d'imbibition d'huile sont cohérentes avec le modèle de Washburn, avec un taux d'imbibition de presque 3 ordres de grandeur plus élevé que celui de l'eau. Bien que nous n'observions toujours pas une transition rapide et nette vers un plateau selon le modèle de Washburn, nous pouvons considérer qu'une pénétration plus lente aux temps longs devient significative vers la fin du test (voir Fig.3.3). Compte tenu des caractéristiques des vaisseaux et des fibres, il est naturel d'attribuer d'abord la pénétration rapide à l'écoulement dans les gros vaisseaux puis l'infiltration lente de l'huile à l'écoulement dans les fibres à travers des ponctuations. Les résultats d'IRM et de tomographie aux rayons X confirment plus tard cette hypothèse.

En laissant de côté ces considérations, nous pouvons estimer dans une première approche la hauteur du plateau pour l'imbibition dans les vaisseaux autour de $\Omega/S = 2\ cm$.

On peut effectuer des calculs similaires à ceux réalisés avec l'eau dans la section précédente : ce plateau donne alors $h_{max} = 5\ cm$ avec $\varepsilon = 0,4$ et conduit à un angle de contact $\theta \approx 52°$. Par ailleurs, nous pouvons obtenir directement $\lambda = 8 \times 10^{-5}\ m\mathrm{P}a^{1/2}$ avec la pente des courbes de la Fig.3.3. Avec l'équation.3.2, nous en déduisant la perméabilité de nos échantillons de peuplier $k_{huile} = 1,7 \times 10^{-11}\ m^2$. Comme l'estimation du niveau du plateau n'est pas précise, nous considérons que le niveau du plateau se situe à $2-3\ cm$. De la même façon, nous pouvons calculer la perméabilité avec $3\ cm$ et nous aurons alors une valeur de k 1.5 fois plus grande.

Par ailleurs, en nous appuyant sur le modèle de tubes capillaires parallèles, nous obtenons en théorie $k = \varepsilon \mathrm{R}^2/8 \approx 1,5 \times 10^{-10}\ m^2$, environ 5 - 9 fois plus élevée que la valeur expérimentale ci-dessus. Cet écart pourrait être expliqué par plusieurs facteurs, par exemple, la sous-estimation des résistances structurales par rapport aux canaux idéaux (longueur des vaisseaux inférieure à la taille de nos échantillons, irrégularité de la surface des parois, la réduction de la section des canaux, etc) ou la surestimation du nombre de vaisseaux actifs. En effet, nous verrons plus tard avec les profils IRM que la porosité accessible pour l'huile est en réalité de 0,3 au lieu de 0,4. Cela suggère que tous les vaisseaux ne participent pas au transport hydraulique. Ceci sera aussi confirmé par les images tomographiques au synchrotron plus tard.

3.1.3 Imbibition d'eau dans le peuplier

Nous venons de voir que pour les huiles apolaires qui n'interagissent pas avec le bois, nous observons que le processus d'imbibition est cohérent avec la loi de Washburn, malgré un écart qui peut être expliqué par la complexité de la structure.

Sur la Fig.3.3, nous pouvons remarquer que la courbe d'eau est parallèle à celle des huiles et se situe au-dessous de celle des huiles environ $10^{1,2} \sim 10^{1,4}$ plus bas. Cela indique directement le ratio de λ entre l'huile et l'eau. Enfin, avec l'Eq.3.2 nous avons $k \sim \lambda^2/\gamma$. Par conséquent, la Fig.3.3 nous montre une constatation forte et directe : le ratio de perméabilité apparente entre l'huile et l'eau est de 4×10^{-4} à 10^{-3}.

À ce stade,il y a donc plusieurs anomalies :

1. Comme nous avons pu voir dans le chapitre 1, la perméabilité est une propriété intrinsèque du milieu poreux qui révèle sa structure interne. Néanmoins, nous obtenons avec l'eau une perméabilité de trois ordres de grandeur plus petite que celle de l'huile. Cette différence, avec la répétabilité montrée par les expériences avec les huiles, ne peut pas être expliquée simplement par une mauvaise estimation dans les calculs, par exemple, le niveau du plateau.
2. La perméabilité pour l'eau obtenue de plusieurs ordres de grandeur plus petite que la valeur théorique lors d'une imbibition capillaire, pose la question du mécanisme fondamental : si ce n'est pas la force capillaire, quelle serait alors la force motrice pour l'ascension d'eau ?
3. L'écart entre la hauteur de la montée et la dynamique d'imbibition pour l'eau semble suggérer que la loi de Washburn ne s'applique pas dans l'imbibition de l'eau dans

le bois. Ceci est en forte contradiction avec le cas des huiles où la loi de Washburn s'applique. Pourquoi le processus d'imbibition avec l'eau diffère-t-il de celui avec l'huile ?

En effet, les calculs que nous venons de faire semblent un cas trop idéal : nous ne prenons en compte que la phase liquide et considérons que l'invasion des lumens des vaisseaux. Pour l'huile ces hypothèses semblent valables : nous n'avons pas observé de déformation, ce qui signifie que l'huile n'interagit pas avec les parois cellulaires ; et nous verrons plus tard avec les profils IRM ainsi qu'avec les images de tomographie aux rayons X que le transfert d'huile depuis les vaisseaux vers les fibres via les ponctuations est effectivement négligeable.

Pourtant, les transferts d'eau dans le bois sont un phénomène bien plus complexe (voir Section.1.3.1) avec différentes phases d'eau : il y a non seulement l'eau liquide qui circule dans les lumens , mais aussi une quantité d'eau liée qui est adsorbée par liaisons hydrogènes dans les parois et est à l'origine de la déformation du bois. En conséquence, l'eau liée semble un élément clé pour comprendre le phénomène.

Dans la section suivante, nous allons étudier d'abord plusieurs facteurs (force capillaire, présence éventuelle de bulles d'air, teneur en eau initiale) qui pourraient avoir un impact sur la dynamique d'imbibition d'eau dans le peuplier. Nous présenterons à la fin de la section les mesures de déformation au cours de l'imbibition d'eau pour approfondir la question sur l'influence de l'eau liée.

3.1.3.1 Influence des paramètres

Eau dégazée Une des questions que nous pouvons nous poser est : "existe-il un mécanisme inconnu (une structure sélective par exemple) qui laisse passer l'huile mais bloque le passage de l'eau ? " Dans ce contexte, nous pensons au phénomène de l'embolie dans les plantes.

Nous avons vu dans le chapitre 1 que l'embolie est un phénomène courant et fatal pour l'arbre. Les plantes ont développé une stratégie pour empêcher l'expansion de bulles d'air par les ponctuations dans leur système hydraulique. Est-il possible que l'air dissous dans l'eau forme des bulles qui bloquent la montée de l'eau au niveau des irrégularités de paroi au sein des vaisseaux ? Même si cela semble impossible compte tenu de la structure des vaisseaux chez les feuillus, nous pouvons toujours vérifier cette possibilité. Pour cela, nous avons préparé de l'eau dégazée en mettant de l'eau distillée sous vide pendant plusieurs heures jusqu'à ce que à l'œil nu il n'y ait plus de bulles d'air.

La Fig.3.4 montre la courbe d'imbibition pour l'eau dégazée (étoiles). Compte tenu de l'incertitude estimée à partir d'expériences similaires (20 %), nous n'avons pas observé de différence entre l'eau distillée et l'eau dégazée. Cela signifie que les bulles d'air qui bloqueraient le passage d'eau n'existent pas. De plus, le bon accord entre les mesures par pesées et les mesures sur des gouttes confirme cette idée : même si un tel blocage physique existait d'une façon ou d'une autre, il devrait fonctionner à l'échelle de la longueur caractéristique des éléments de vaisseaux ($\sim mm$). Or les mesures sur gouttes montrent

la même cinétique à des distances beaucoup plus petites ($\sim 0,1mm$) tout près de l'entrée du milieu. Selon la structure observée dans la section 2.1.1.4, il est difficile d'imaginer une structure qui bloquerait le passage. Le résultat avec l'eau dégazée suggère que le ralentissement de l'imbibition d'eau ne peut pas simplement être expliqué par un blocage physique.

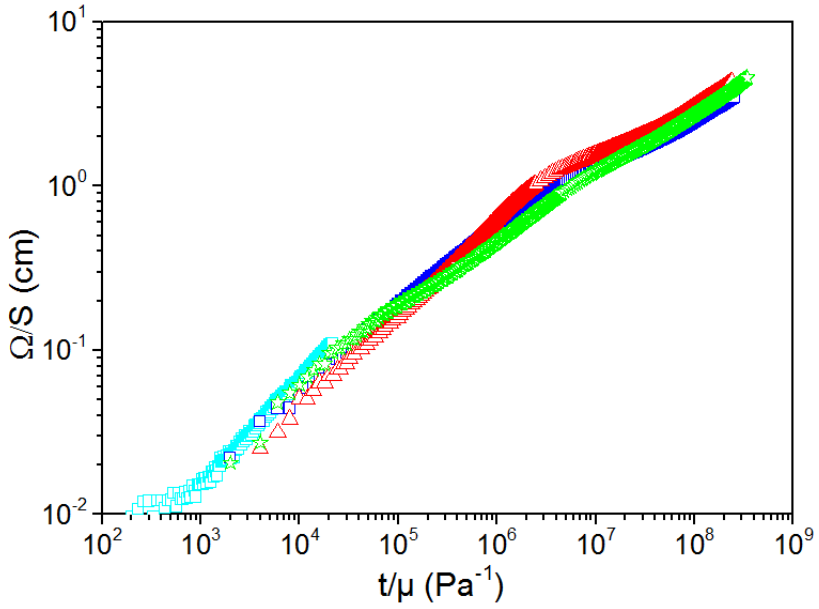


FIGURE 3.4 – Courbes d'imbibition pour l'eau distillée (carrées bleues), l'eau dégazée (étoiles vertes), solution de bétaïne à 1 g/L (triangles rouges). Les mesures sur des gouttes avec l'eau déminéralisée sont aussi montrées sur cette figure, représentées par des carrées cyans.

Solution de bétaïne de cocamidopropyle Le non-accord entre le modèle de Washburn et les expériences pose la question de la pression capillaire comme force motrice. Afin de vérifier cela, nous préparons une solution aqueuse de bétaïne de cocamidopropyle à 1g/L ayant une tension superficielle de $0,03$ N/m, soit moins de la moitié de celle de l'eau pure ($0,072$ N/m).

La courbe d'imbibition pour la solution de bétaïne de cocamidopropyle est présentée sur la Fig.3.4 (triangles). On peut voir que, bien que la tension superficielle γ soit diminuée par un facteur 2, nous n'observons pas de différence ni sur la cinétique ni sur la hauteur finale atteinte. Ceci semble suggérer que la pression capillaire, ou au moins la tension superficielle, n'a aucun impact sur l'imbibition.

Teneur en eau initiale Finalement, l'eau liée semble la dernière possibilité pour expliquer que le processus d'imbibition d'eau n'est pas cohérent avec la théorie de Washburn. En effet, le bois se déforme en présence de l'humidité. Est-ce que l'interaction entre l'eau et le bois pourrait avoir un impact sur la dynamique de la pénétration d'eau libre ? Par exemple, il a été déjà observé dans plusieurs études que la présence de l'eau capillaire au

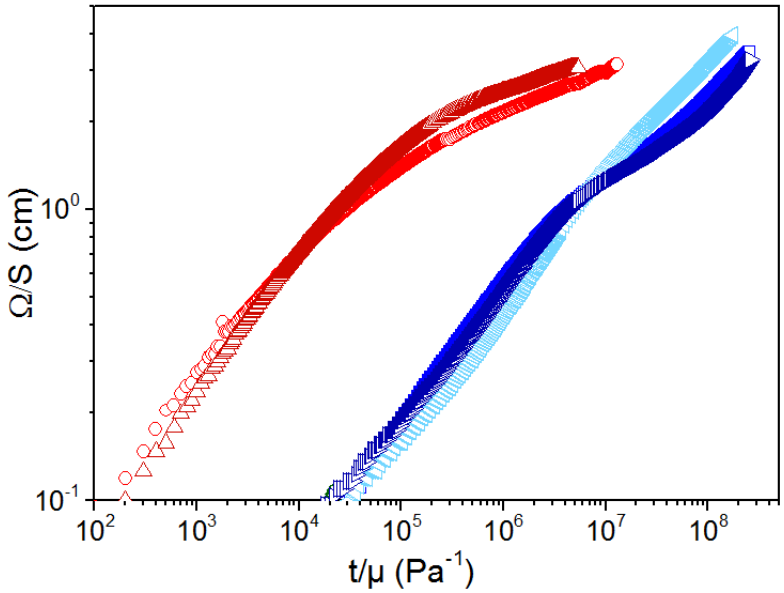


FIGURE 3.5 – Influence de la teneur en eau initiale sur les courbes d'imbibition. Pour l'eau : le bois sec (◁ bleu claire), 55 % HR (□ bleu intermédiaire) et 97 % HR (▷ bleu foncé). Pour l'huile 47V20 : 55 % HR (◯ rouge) et 97 %HR (△ rouge foncé)

niveau des ponctuations [COMSTOCK et CÔTÉ, 1968; LIESE et BAUCH, 1967] ainsi que la déformation locale induite par l'eau liée [BANKS, 1980] augmentent le taux d'aspiration des ponctuations dans les résineux et diminuent par conséquent la perméabilité du bois.

Afin de vérifier l'hypothèse selon laquelle l'adsorption de l'eau liée pourrait changer la structure du bois au cours de l'imbibition, nous réalisons des tests d'imbibition avec des échantillons ayant différentes teneurs en eau initiale : échantillon séché à l'étuve à 60°C (voir Section.2.1.2), échantillon préconditionné à 55% HR (les échantillons par défaut) et échantillon préconditionné à 97% HR.

Sur la Fig.3.5 sont présentées les courbes d'imbibition pour les échantillons ayant différentes teneurs en eau initiale. On peut remarquer tout de suite que la teneur en eau initiale dans les échantillons de bois a une influence négligeable sur la dynamique d'imbibition. Quelle que soit la teneur en eau initiale (sous forme d'eau liée) présente dans le bois, les courbes se superposent. Par conséquent, nous pouvons en conclure qu'il y a pas de changement fondamental de structure interne à cause du gonflement du bois (par exemple, fermeture du passage pour l'eau comme l'aspiration des ponctuations dans le cas des résineux). Cela est confirmé par la superposition des deux courbes pour l'huile de silicone.

Il faut cependant noter que nous pourrions tout à fait nous attendre à voir des différences avec la variation de la teneur en eau initiale : le gonflement induit par l'eau liée augmenterait la taille des pores, ou l'échantillon étant initialement sec devrait absorber plus d'eau que l'échantillon conditionné à 97 %HR qui a des parois presque saturées. En effet, il semble que pour l'huile, on observe une légère augmentation de la quantité d'huile absorbée vers la fin d'expérience, alors que pour l'eau, l'absorption d'eau semble

plus élevée dans l'échantillon sec (voir Fig.3.5). Cependant, avec l'incertitude des expériences de l'ordre de 20 % et la variabilité de la structure d'échantillon qui dépend fortement de l'endroit de prélèvement, nous ne pouvons pas conclure de façon nette sur ce point. On peut faire une estimation simple. Si la teneur en eau maximale est de 150% MC, alors que la différence en eau liée initiale est de 25% (PSF) entre un échantillon sec et un échantillon saturé en eau liée, cela induira $25/150 \simeq 16,7\%$ de différence sur le résultat.

3.1.3.2 Mesures de déformations

Étudions la déformation des échantillons au cours de l'imbibition. Les déformations locales dans le plan transverse sont mesurées avec la méthode décrite dans la section.2.2. Les résultats de déformations radiales et tangentielles au cours de l'imbibition sont présentés sur la Fig.3.6. Nous considérons que la déformation longitudinale est négligeable et les mesures dans cette direction ne sont pas effectuées.

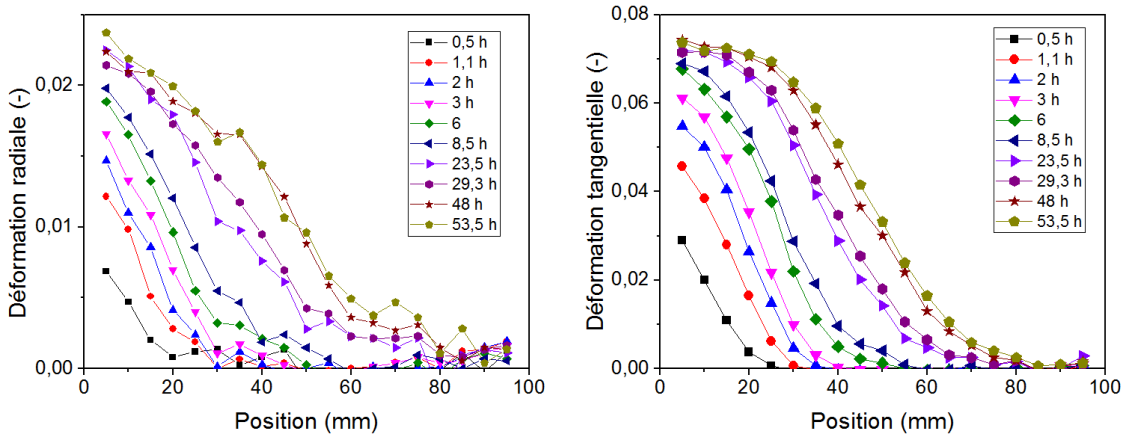


FIGURE 3.6 – Mesures de déformation selon la direction longitudinale au cours de l'imbibition. **À gauche** : déformations radiales ; **À droite** : déformations tangentielles.

Les profils de déformation sur la Fig.3.6 montrent que l'échantillon ne se déforme pas de manière uniforme. Les déformations locales, que ce soit selon la direction R ou T, avancent progressivement dans la direction d'imbibition. Sur différentes hauteurs, le gonflement ne débute pas au même moment : d'une part, on peut voir que près de l'entrée d'eau (côté gauche des figures) la déformation commence "tôt" et atteint presque un plateau (au moins pour la direction R) au bout de 30 h ; d'autre part, on constate que, plus la hauteur est élevée, plus tard la déformation commence. Les déformations avancent alors sous forme d'un front de propagation, similaire à un front de diffusion.

Par ailleurs, nous pouvons remarquer l'anisotropie de la déformation : selon la direction tangentielle, la déformation est environ deux fois plus élevée que selon la direction radiale.

Il n'est cependant pas étonnant d'observer de telle formes de profils de déformations. Nous savons déjà dans le chapitre 1 que, la déformation du bois est directement associée à l'adsorption de l'eau liée dans les parois. Les mesures de déformations sur la Fig.3.6

peuvent alors nous révéler la dynamique de l'avancement de l'eau liée par diffusion. Est-ce que nous sommes capables d'étudier les comportements de l'eau liée de façon quantitative à partir des déformations ? Pour répondre à cette question, nous étudions maintenant la relation entre la déformation volumique et la quantité de l'eau liée adsorbée dans le bois.

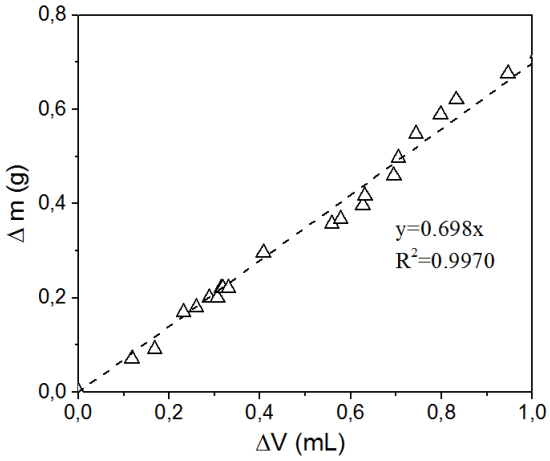


FIGURE 3.7 – Masse d'eau adsorbée (g) en fonction de la variation du volume (mL) lorsqu'un échantillon initialement conditionné à 55 %HR est placé à 97 %HR.

Des échantillons de 1 cm^3 de peuplier initialement stabilisés à 55 %HR sont placés dans un dessicateur à 97 %HR. À cause du changement d'humidité dans l'atmosphère, l'échantillon absorbe de l'eau. L'adsorption de molécules d'eau dans les parois du bois entraîne une augmentation du volume de bois. Pendant les expériences nous mesurons alors régulièrement la masse et le volume d'échantillons. L'évolution de la masse d'eau absorbée en fonction de la variation de volume des échantillons est présentée sur la Fig.3.7.

La Fig.3.7 montre clairement la relation linéaire entre la masse d'eau adsorbée et l'augmentation du volume de l'échantillon, ce qui est cohérent avec les résultats de BONNET [2017]. Dans le domaine hygroscopique, toute eau absorbée dans le bois peut être considérée sous forme d'eau liée dans les parois cellulaires. La linéarité avec une pente de 0,7 nous indique que, pour 1 unité du volume d'eau liée (si on considère que la densité de l'eau liée égale à celle de l'eau liquide) adsorbée dans les parois, le volume apparente de l'échantillon est augmenté en relatif $\Delta V = 1/0.7 \approx 1.4$. Cette figure nous permet d'établir un lien direct entre la déformation et la quantité d'eau liée. Si on connait le volume déformé au cours de l'imbibition, nous pouvons en déduire la quantité d'eau liée adsorbée. Nous verrons dans la section suivante que, la déduction de la masse d'eau liée par le volume déformé est effectivement cohérente avec les mesures par IRM.

3.1.4 Discussion et conclusion

Les résultats macroscopiques des tests d'imbibition présentés dans cette section nous révèlent un phénomène particulier : les contradictions observées sur l'imbibition d'eau dans les feuillus montrent que la pénétration d'eau ne peut pas être simplement liée à

des effets capillaires. Au contraire, nous avons un bon accord entre le modèle de Washburn et les résultats d'imbibition dans le cas des huiles. La grande différence entre l'eau et les huiles apolaires, est leur capacité à interagir avec le bois. Cela signifie que, si le liquide imbibé n'interagit pas avec le bois, le liquide voit un milieu poreux rigide et la loi de Washburn s'applique. En revanche, si le liquide interagit avec le squelette du milieu, la dynamique d'imbibition est dramatiquement ralentie.

Les résultats préliminaires avec les mesures de déformation nous montrent l'adsorption et l'avancement de l'eau liée au cours de l'imbibition, un phénomène qui semble indépendant de l'ascension de l'eau liquide sous l'effet capillaire. Pour étudier plus finement les comportements de l'eau liée et de l'eau libre , nous réalisons maintenant des mesures par IRM.

3.2 Observations par RMN et IRM

La technique de RMN est utilisée depuis des décennies pour étudier le matériau bois. L'avantage de la RMN et de l'IRM dans notre étude est de permettre l'identification des différents types d'eau et un suivi dynamique au cours de l'imbibition. Une revue bibliographique sur l'application de la RMN dans le domaine du bois est présentée dans la section 2.3.

Dans cette section, nous nous concentrons d'abord sur la caractérisation des propriétés RMN des liquides étudiés. Les distributions des temps de relaxation ainsi que leurs évolutions en fonction de l'humidité ou du temps d'imbibition sont présentées. En nous basant sur ces résultats, nous sommes capables de développer des séquences d'IRM appropriées. Puis, dans la deuxième partie, nous utilisons les images et les profils IRM pour étudier la dynamique de l'eau liée et de l'eau libre.

Toutes les mesures de RMN présentées dans ce chapitre sauf mention spéciale, sont des mesures de T_2 à l'aide de la séquence CPMG. Les mesures de T_2 étant plus courtes que celles de T_1 nous permettent de suivre l'évolution rapide au début de l'imbibition.

3.2.1 Mesures du temps de relaxation

3.2.1.1 Calibration du signal RMN

Nous avons déjà vu dans la section 2.3 que le signal RMN est proportionnel au nombre de protons. Pour la distribution du temps de relaxation, l'aire sous un pic est alors proportionnelle à la quantité du composant correspondant. La calibration de signal RMN à l'aide de la séquence CPMG est réalisée avec de l'eau pure.

La Fig.3.8 montre l'évolution de l'intensité du signal RMN en fonction de la masse d'eau. Nous pouvons observer une dépendance linéaire entre le signal RMN et la masse d'eau, avec un coefficient de proportionnalité de 826 g^{-1} . Ce résultat nous permet de détecter et quantifier la quantité d'eau dans le bois.

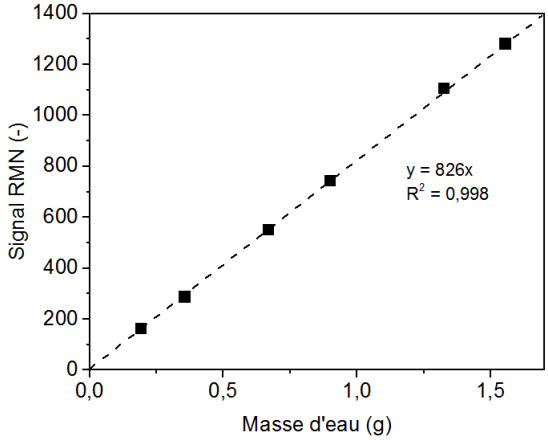


FIGURE 3.8 – Calibration de signal RMN avec la séquence CPMG utilisée.

3.2.1.2 Distribution de T_2

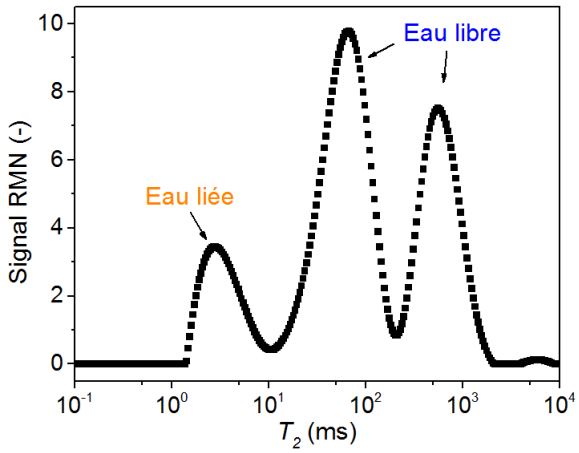


FIGURE 3.9 – Distribution de temps de relaxation T_2 d'un échantillon saturé d'eau.

La distribution des temps de relaxation T_2 d'un échantillon de peuplier de 1 cm^3 imbibé d'eau est présentée sur la Fig.3.9. Les 3 pics qu'on peut observer sur cette figure correspondent à des molécules d'eau dans différents états. Selon les études précédentes [ALMEIDA et collab., 2007; BONNET, 2017; LABBE et collab., 2002], nous pouvons associer les pics aux différents types d'eau selon la valeur des T_2 :

— l'eau liée adsorbée dans les parois cellulaires relaxant le plus vite, correspond à des T_2 inférieurs à 10 ms,

— l'eau libre dans les lumens a des T_2 plus lents. Elle est associée aux deux pics : l'un à 50 ms qui correspond aux petits pores, et l'autre à 600 ms correspondant aux grands pores.

Cette observation est cohérente avec ce que nous avons pu voir dans la partie 2.3 : en général, le temps de relaxation augmente avec la taille de pores et diminue avec la mobilité des atomes. L'eau liée, adsorbée sur les sites d'adsorption des polymères de bois par

liaisons hydrogènes, a une mobilité réduite et se trouve dans des pores nanométriques dans les parois ; tandis que l'eau libre peut circuler librement dans les grands pores (lumens). Les atomes ^{1}H dans les polymères de bois en état « solide » relaxent très rapidement. Avec le temps d'écho $0,5\ ms$ de la séquence CPMG utilisée ici, les hydrogènes de polymères ne sont pas mesurables.

Avec les données de la Fig.3.9 on peut en déduire la quantité d'eau dans le bois avec le coefficient de proportionnalité obtenu à partir de la Fig.3.8. Le signal RMN sur la Fig.3.9 correspond à $0,849\ g$, tandis que la mesure de masse nous indique $0,834\ g$ d'eau présente. On peut donc voir que l'incertitude de mesure est 1,8 %. On obtient finalement la masse d'eau associée à chaque pic : $0,120\ g$ d'eau liée qui correspond à 25,5% MC, $0,442\ g$ d'eau libre (50 ms) qui correspond à 94,1% MC et $0,287\ g$ d'eau libre (600 ms), soit 61,1% MC.

La régression bi-exponentielle décrite par l'Eq.2.16 dans le but de séparer l'eau liée et l'eau libre pour les profils IRM, est basé sur les données de la Fig.3.9. Les deux pics de l'eau libre sont considérés dans leur ensemble comme l'eau libre. Il est à noter que nous aurions pu attribuer les deux pics de l'eau libre à l'eau libre dans les fibres (50 ms) et dans les vaisseaux (600 ms). Cependant, le ratio des aires des deux pics ne correspond pas au rapport du volume entre les fibres et les vaisseaux. Sur la Fig.3.8 on voit bien que le pic à 50 ms est plus grand que celui à 600 ms ; alors que selon nos observations au microscope (voir Tableau.2.1) le rapport du volume entre les fibres et les vaisseaux est 3 : 4. Bien que nous n'ayons actuellement pas d'explication, nous pouvons nous contenter de les interpréter comme de l'eau libre dans les petits et les grands pores. Cela n'influencera pas nos analyses des résultats plus tard.

Les mesures du T_2 pour l'huile de silicone 47V20 sont aussi effectuées et les résultats sont montrés sur la Fig.3.10.

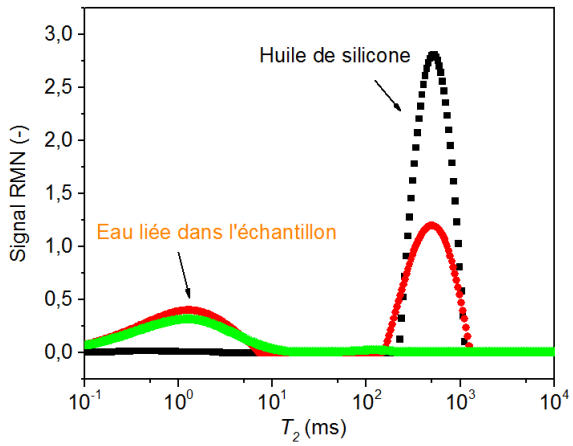


FIGURE 3.10 – Distribution de temps de relaxation T_2 pour l'huile de silicone 47V20 : $0,136\ g$ d'huile pure (noir), l'échantillon stabilisé à 55 % HR (vert) et le même échantillon imbibé de $0,074\ g$ d'huile (rouge).

Il est intéressant de voir sur la Fig.3.10, que ce soit l'huile pure ou l'huile dans le bois, leur temps de relaxation est identique à 500 ms et n'est par affecté par la surface des pores.

En plus, le ratio des aires sous les deux pics de l'huile est cohérent avec la masse d'huile pesée. Ce résultat semble confirmer que l'huile de silicone n'interagit pas avec le bois. Par ailleurs, nous pouvons constater que le pic de l'eau liée initialement présente dans l'échantillon n'est pas affecté par l'imbibition d'huile.

3.2.1.3 Carte 2D T_1-T_2

Afin d'avoir des mesures plus précises sur les composants de signal qui relaxent rapidement, nous avons réalisé des spectres de corrélation $T_1 - T_2$, ou des cartes 2D, à l'aide de la séquence présentée dans la section.2.3.2. Notons que le temps d'écho utilisé ici est de 0,06 ms, ce qui nous permet de visualiser les pics avec T_2 courts pour les échantillons à l'équilibre. Les spectres obtenus sont présentés sur la Fig.3.11.

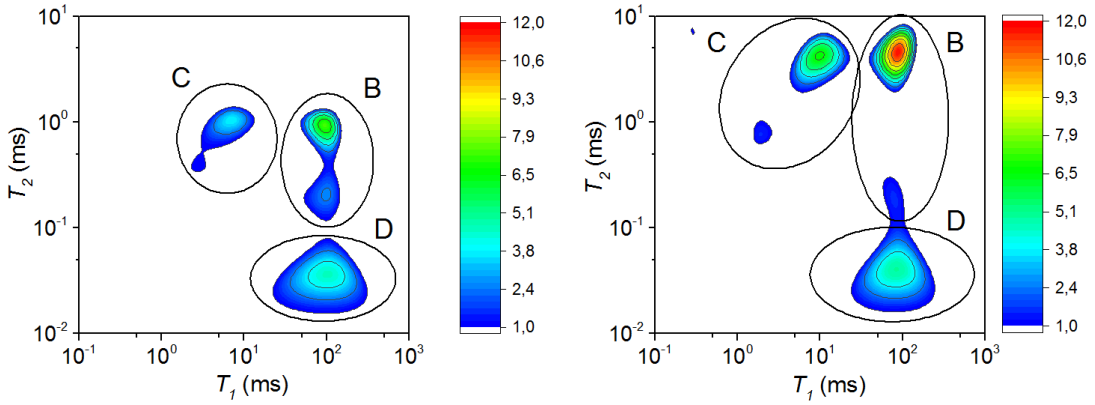


FIGURE 3.11 – Spectres de corrélation $T_1 - T_2$: à gauche, 55 %HR; à droite, 97 %HR

Sur la Fig.3.11, on peut identifier trois pics principaux sur les spectres de corrélation $T_1 - T_2$ pour deux humidités étudiées dans le domaine hygroscopique. Ces spectres sont similaires à ceux obtenus dans les travaux de COX et collab. [2010] et de BONNET et collab. [2017]. Les pics de la Fig.3.11 sont nommés de la même manière que dans les travaux de ces auteurs.

Selon les auteurs, les pics B et C sont attribués à l'eau liée. Ayant la même valeur de T_2 mais différents T_1, les deux types d'eau liée, qui doivent être localisés dans deux réservoirs distincts, ne sont pas identifiables sur la Fig.3.9. Comme l'évolution des pics B et C est similaire, nous ne cherchons pas à interpréter les deux types d'eau liée dans cette étude. Quant au pic D, il est identifié comme le signal des polymères du bois, qui n'est pas visible sur la Fig.3.9.

Pour le pic A cité dans les travaux de COX et collab. [2010] qui est associée à l'eau libre dans les lumens, nous ne l'avons pas observé pendant nos expériences dans le domaine hygroscopique.

La Fig.3.11 nous révèle clairement l'augmentation du temps de relaxation de l'eau liée avec la teneur en eau dans l'échantillon. Cette relation suppose que l'eau liée peut gagner

en mobilité lors de l'augmentation de la quantité d'eau liée adsorbée. Ceci est cohérent avec l'observation de BONNET [2017].

3.2.1.4 Suivi d'imbibition par mesures de T_2

Il est maintenant intéressant d'étudier l'évolution des différents types d'eau au cours d'une expérience d'imbibition. Pour les expériences d'imbibition au minispec, le protocole est différent de celui de l'expérience macroscopique. Un échantillon de 1 cm^3 est immergé complètement dans l'eau au fond d'un tube puis le tube est fermé pour garder la température constante et éviter le séchage. L'imbibition dans ce cas s'effectue dans toutes les directions. Le suivi dynamique de la distribution de T_2 au cours de l'imbibition est présenté sur la fig.3.12.

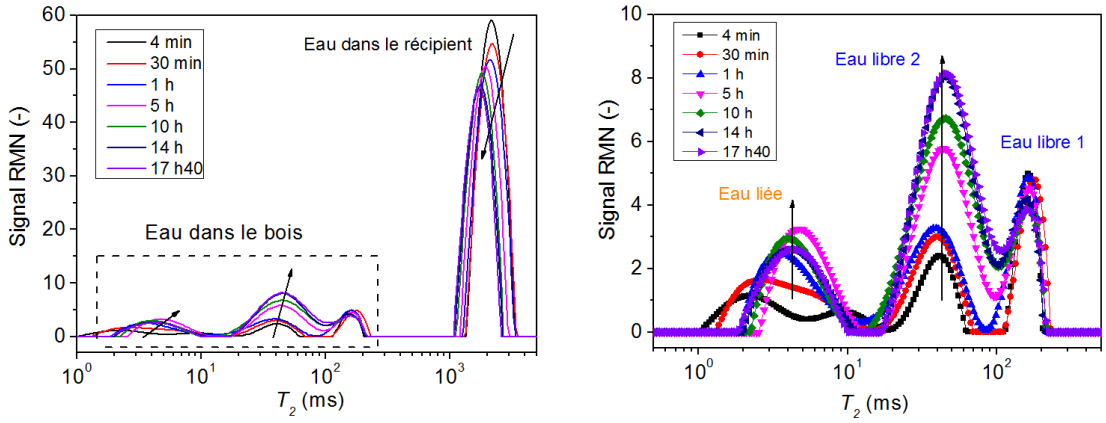


FIGURE 3.12 – **A gauche** : suivi dynamique par mesures du temps de relaxation au cours de l'imbibition. L'ensemble du signal est présenté. **A droite** : zoom sur les pics d'eau dans le bois.

Nous pouvons constater dans un premier temps sur la Fig.3.12 que, le pic correspondant à l'eau extérieure diminue au cours du temps, tandis que les aires sous les pics dans le bois augmentent. L'évolution de chaque pic met en évidence le transfert d'eau depuis l'extérieur dans le bois. Ensuite, si on observe les pics dans le bois de plus près (figure de droite de la Fig.3.12), on peut voir que les trois pics évoluent de façon différente :

— Pour le pic associé à l'eau liée, nous pouvons remarquer non seulement l'augmentation de l'aire sous le pic, mais aussi le déplacement de leur temps de relaxation vers la droite sur l'axe du T_2. Cela confirme l'observation sur la Fig.3.11 que le T_2 de l'eau liée augmente avec la quantité d'eau adsorbée. Puis au bout de 5 h, l'aire et le temps de relaxation du pic de l'eau liée semblent stabilisés, ce qui signifie que les parois sont saturées en eau liée.

— Pour le pic 1 de l'eau libre associé aux grands pores dans l'échantillon, elle semble atteindre la saturation dès la première mesure à 4 min de l'imbibition. Cela suggère qu'il s'agit d'un phénomène très rapide de pénétration.

— Le pic 2 qui représente l'eau libre dans les petits pores, son intensité évolue progressivement pendant toute la durée de mesure, même après la saturation du pic d'eau

liée.

L'évolution de tous les composants du signal est plus évidente en traçant les aires sous les pics en fonction du temps, comme montrée par la Fig.3.13. Dans un premier temps, on peut voir que le signal de l'eau à l'extérieur diminue tandis que les intensités des pics associés à l'eau dans le bois augmentent. Comme le système est confiné dans un tube dans l'appareil *Minispec*, l'intégrale du signal total est constante pendant toute la durée de l'expérience. Regardons maintenant l'évolution des trois pics dans le bois. Nous pouvons remarquer que l'eau liée et l'eau libre dans les grands pores arrivent rapidement à un plateau, alors que l'intensité de signal de l'eau libre dans les petits pores continuer à augmenter, même à la fin d'expérience (environ 17h) elle n'est pas encore saturée. Notons qu'une légère baisse est observé sur les deux plateaux. Ceci est probablement lié à la séparation difficile des pics lorsqu'ils s'approchent au cours de l'augmentation de la masse d'eau absorbée.

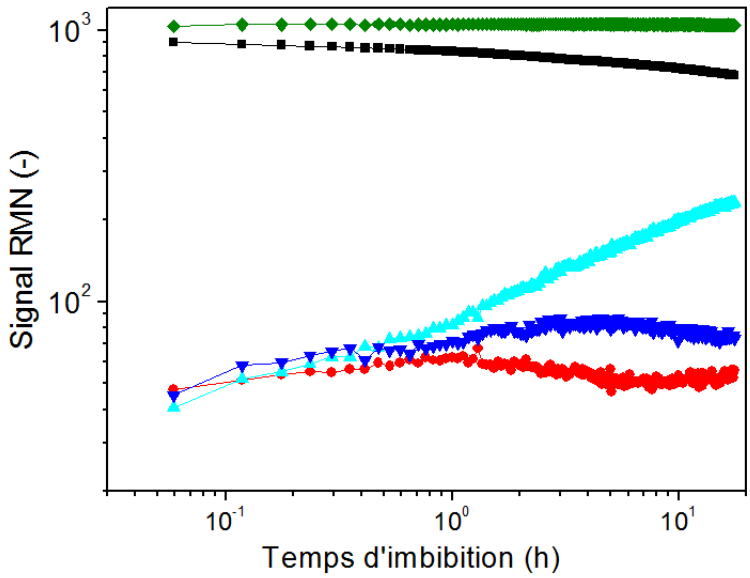


FIGURE 3.13 – Évolution des intensités des pics associés à différentes types d'eau au cours de l'imbibition : Signal total (vert), l'eau extérieure (noir), l'intensité du pic 2 de l'eau libre (cyan), l'intensité du pic 1 de l'eau libre (bleu) et l'eau liée (rouge).

Ces observations nous permettent de décrire la situation de manière qualitative : lorsqu'un échantillon le bois est immergé dans l'eau, il se sature rapidement en eau liée. En même temps, l'eau libre pénètre d'abord rapidement dans les grands pores, puis elle s'infiltre progressivement dans les petits pores.

Cependant, pour étudier la cinétique d'imbibition selon la direction longitudinale et répondre aux questions évoquées plus tôt, les mesures de RMN restent insuffisantes. Il convient maintenant de regarder les mesures par IRM, qui nous fourniront des informations spatiales quantitatives.

3.2.2 Observations par images IRM

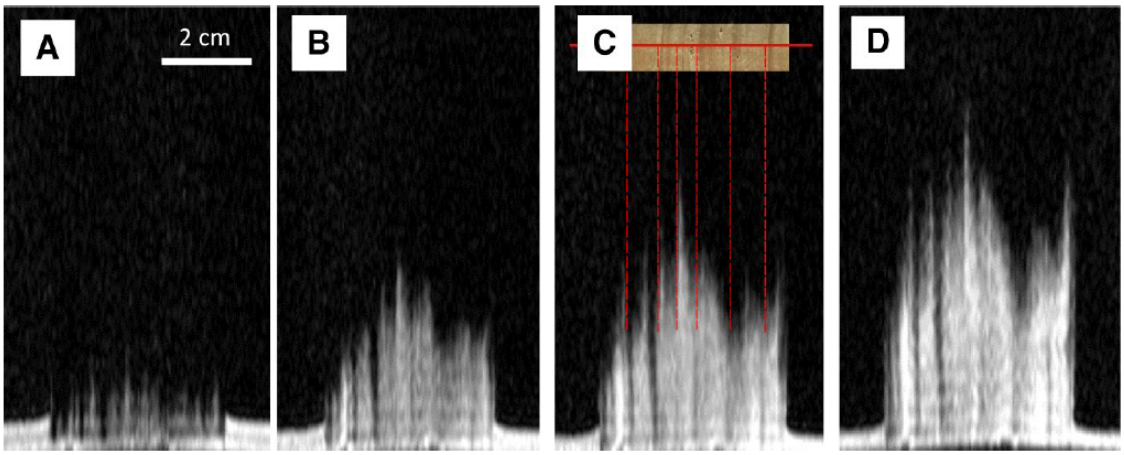


FIGURE 3.14 – Série d'images IRM 2D montrant la distribution d'eau dans un échantillon dans le plan RL, à différents instants pendant l'imbibition : 15 min, 12, 24 et 60 h. Une photo de la section transversale est montrée en insert sur (c), où on peut voir la correspondance entre l'organisation des cernes et les passages d'eau. Notons que les images sont obtenues dans des tranches de 2 mm d'épaisseur, où l'effet de la courbure des cernes est négligeable.

Avant d'analyser les profils IRM, nous pouvons d'abord commencer par regarder les images 2D, qui nous donneront une vision directe de la distribution d'eau au sein de l'échantillon. Pour les expériences d'imbibition dans l'IRM, un échantillon de la même taille que ceux utilisés pendant les expériences macroscopiques (4(R) × 2(T) × 10(L) cm^3) est mis en contact avec de l'eau pour que l'imbibition s'effectue selon la direction longitudinale.

La Fig.3.14 montre les images dans le plan RL à différents instants au cours de l'imbibition. À première vue, il semble que la remontée d'eau est qualitativement similaire à la prédiction par Washburn : le front d'imbibition, bien qu'hétérogène, monte progressivement vers le haut de l'échantillon et de plus en plus lentement. À cause de l'hétérogénéité de la structure, la vitesse de la remontée d'eau dépend de la localisation selon la direction radiale. En comparant l'image IRM avec une image montrant la section transverse de l'échantillon (voir Fig.3.14.c), nous remarquons que la pénétration d'eau est plus rapide dans le bois initial que dans le bois final. Cela pourrait être due à la différence de tailles de vaisseaux entre le bois initial et le bois final.

Cependant, le signal présenté sur les images ne nous permet pas de distinguer l'eau liée de l'eau libre. En effet, comme nous venons de voir sur la Fig.3.9 et la Fig.3.11, le T_2 de l'eau liée se trouve entre $1 \sim 4$ ms, alors que le TE utilisé pour obtenir des images est de 10 ms. De plus, le scan durant 28 min nous présente en réalité le signal en moyenne pendant la durée du scan, ce qui ne nous permet pas d'obtenir les variations de l'intensité du signal précisément. Par conséquent, les profils IRM sont une méthode plus adéquate pour étudier le processus d'imbibition.

3.2.3 Profils d'huile de silicone

Des mesures quantitatives sont obtenues avec les profils 1D où la teneur en liquide est projetée selon l'axe de l'échantillon, qui est aussi la direction d'imbibition. Commençons d'abord par le cas le plus simple : l'imbibition réalisée avec de l'huile de silicone 47V20. Une série de profils de teneur en huile (voir Fig.3.15) montre l'évolution de la distribution d'huile au cours de l'imbibition.

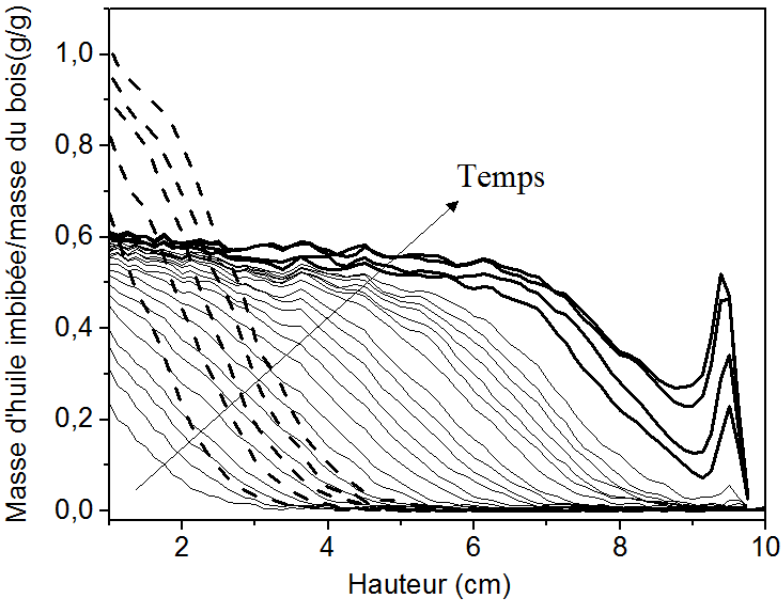


FIGURE 3.15 – Profils de teneur en huile (47V20) suivant la direction longitudinale. Les profils représentent la distribution d'huile à différents instants (de gauche à droite) : 1, 2, 3, 4, 6, 8, 10, 13, 16, 20, 24, 28, 33, 38, 43, 49, 55, 62, 69, 77, 85, 94, 110 min (lignes fines), 3.2, 4.8, 14, 21.8 h (lignes en gras). Pour comparer, quelques profils d'eau libre de la Fig.3.16 sont montrés ici en lignes pointillées à différents instants : 3, 9, 15, 21, 27 h.

Les profils de la Fig.3.15 montrent que l'huile avance dans la direction d'imbibition avec un front incliné. En amont du front, nous observons un plateau qui suggère que le milieu est presque saturé en huile (i.e. à petites hauteurs près de l'entrée d'huile, du côté gauche de la figure). C'est pourquoi on peut voir que les profils ont une tendance de se superposer au niveau du plateau sur des temps plus longs. Comme nous venons de voir sur les images (voir Fig.3.14) que la vitesse de pénétration dépend de la localisation par rapport aux cernes, cette hétérogénéité induit alors le front incliné au lieu d'un front droit et perpendiculaire à la direction d'imbibition. Les caractéristiques de pénétration, i.e. avec un front de pénétration en aval et un plateau de saturation en amont, sont cohérentes avec un processus d'imbibition de type « Washburn ».

Nous pouvons également noter que le front semble avoir atteint le sommet de l'échantillon (à 10 cm) au bout de 2h, puis l'huile semble se répandre sur la surface supérieure de l'échantillon et finalement repénètre vers le bas par des pores qui sont disponibles. Ce processus pourrait expliquer la formation du pic à droite de l'image.

Par ailleurs, d'autres informations peuvent aussi être extraites de la Fig.3.15 et être comparées avec les courbes d'imbibition macroscopiques. On peut déduire la porosité accessible à l'huile du niveau de plateau montré par cette figure. La saturation du volume d'huile dans une tranche de $1,25\ mm$ (résolution des profils) est autour de $0,6\ g/g$. Compte tenu la densité de l'huile 47V20 ($0,95 g/cm^3$) et la densité du bois sec ($0,47 g/g$), on trouve que la porosité accessible à l'huile est environ 0,3. Cette valeur est inférieure à la porosité des vaisseaux qui est de 0,4, suggérant qu'effectivement tous les vaisseaux ne sont pas actifs et ne participent pas à la conduction hydraulique.

Enfin, nous constatons que la teneur en huile à partir de $7cm$ est très faible. Ceci est en effet le résultat de l'équilibre capillaire. Le niveau du plateau sur la Fig.3.2 pour les courbes d'imbibition d'huile est $(\Omega/S)_{max} \sim 2\ cm$. Prenons maintenant $\varepsilon = 0,3$, on obtient alors $h_{max} = 2/0,3 \approx 6,7\ cm$, valeur qui est cohérente avec l'observation sur les profils.

3.2.4 Profils d'eau liée et d'eau libre

Grâce à l'extrapolation du signal à l'aide d'une régression bi-exponentielle (voir Eq.2.16), nous obtenons séparément les distributions d'eau liée et d'eau libre et les présentons sur la Fig.3.16. Les profils sur la figure montrent deux formes différentes de distribution. Commençons par analyser le comportement de l'eau libre.

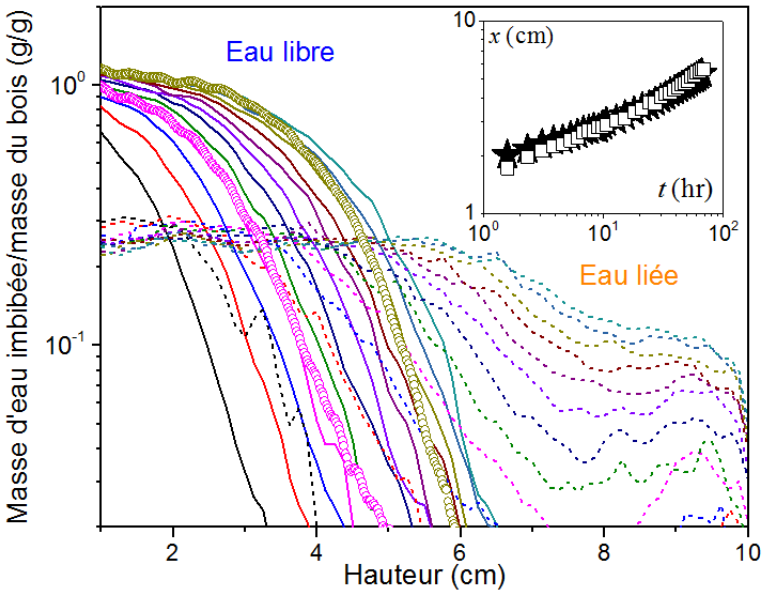


FIGURE 3.16 – Distribution d'eau libre (lignes continues) et d'eau liée (lignes pointillées) suivant la direction d'imbibition à différents instants : (de gauche à droite) le premier profil est à 3 h après le début de l'imbibition, puis les profils sont montrés toutes les 6 h. Deux profils obtenus en intégrant l'intensité de signal sur une section suivant la hauteur sur des images 2 D sont aussi montrés (cercles). Dans l'insert, l'évolution temporelle de la position du front de l'eau libre (déterminée à $0,1\ g/g$) (étoiles) et l'avancement de la zone saturée en eau liée (fin du plateau où débute le front de l'eau liée) (rectangles). L'incertitude de la mesure de position est la résolution des profils ($\pm 1,25\ mm$).

Profils d'eau libre Les profils d'eau libre à différents instants présentent une forme similaire qui indique une diminution de teneur en eau libre selon la direction d'imbibition. De plus, comme nous n'observons pas de plateau même près de l'entrée d'eau sur des temps longs, cela signifie que tous les pores, quelle que soit la hauteur considérée, ne sont pas saturés d'eau libre pendant la durée d'expérience (3 jours).

Pour comprendre l'origine de la forme des profils d'eau libre, il est intéressant de les comparer avec les profils déterminés à partir des images 2D. La distribution d'eau apparente est obtenue en projetant l'intensité du signal d'une image sur la direction longitudinale. Un très bon d'accord peut être observé sur la Fig.3.16 entre deux profils IRM et ceux déduits par les images à 21 h (magenta) et 57 h (vert jaune). Cet accord confirme que les images 2D montrent essentiellement la distribution du signal d'eau libre. Aussi, il suggère que la forme des profils d'eau libre est principalement déterminée par l'hétérogénéité de la distribution de tailles de pores à travers des cernes.

Néanmoins, un autre aspect important que nous pouvons voir avec les profils d'eau libre (voir Fig.3.16) est qu'ils sont bien différents de ceux obtenus avec l'huile de silicone (voir Fig.3.15). L'eau libre et l'huile de silicone, supposées ne pas pénétrer dans les parois et donc circuler seulement dans les lumens du bois, devraient se comporter de manière similaire. La teneur en eau la plus élevée observée ($1,2\ g/g$) pendant la durée d'expérience, indique que l'eau libre est capable d'occuper au moins 56% du volume apparent de bois. Autrement dit, l'eau libre pénètre non seulement dans les vaisseaux mais aussi dans les fibres, bien qu'il y ait des communications très réduites entre les deux (voir Section.1.2.2.2). La différence est d'autant plus évidente si on compare les profils d'eau libre et ceux de l'huile de silicone, voir Fig.3.15 : l'huile monte rapidement dans les vaisseaux, laissant un plateau ($0,6g/g$) en amont du front d'imbibition, tandis que l'eau libre pénètre lentement sur la hauteur mais apparaît aussi dans les fibres sur des temps longs (le premier profil d'eau libre à 3 h dépasse déjà la masse maximale pour l'huile, voir Fig.3.15).

Ce résultat est incohérent avec ce que nous avons pu voir dans la section 1.2.2.2. Si les ponctuations entre fibres et vaisseaux permettent des passages significatifs du fluide, on devrait observer des distributions similaires sur la Fig.3.15. D'ailleurs, compte tenu de la tension superficielle de l'eau plus élevée que celle de l'huile, la pénétration dans les fibres devrait être plus favorable pour l'huile. Or ce n'est pas le cas.

Tous ces résultats nous suggèrent que l'eau pourrait diffuser dans les parois sous forme d'eau liée, puis apparaître dans les lumens des fibres, probablement par condensation. En effet, ce mécanisme n'est pas surprenant : même dans le domaine hygroscopique en-dessous de PSF (mais aux HR élevées), ALMEIDA et collab. [2007] ont observé la présence d'eau libre. Dans ces conditions, il est plausible que l'eau puisse envahir d'abord les fibres près des vaisseaux remplis d'eau, puis le même processus aurait lieu dans les fibres éloignées des vaisseaux. Cela suggère une invasion dans les fibres dans le plan transverse. Par ailleurs, on peut voir que les observations sont cohérentes avec le suivi dynamique par mesures RMN (voir Fig.3.12 et Fig.3.13).

Profils d'eau liée Analysons maintenant les profils d'eau liée. Il est important de rappeler que les mesures d'eau liée par IRM ne sont pas quantitatives à des teneurs faibles à cause du T_2 court (voir Section.2.3.3.2). De ce fait, au début de l'expérience, l'eau liée initialement présente dans l'échantillon à 55 % HR n'est pas visible sur les profils. Cependant, au fur et à mesure que l'eau liée est absorbée, l'ensemble du signal (ancien + nouveau) devient finalement visible et quantitatif. Malgré tout, nous pouvons toujours d'étudier la dynamique de l'eau liée de façon qualitative avec les profils présents. En première approximation, nous supposons que le signal devient détectable lorsque de la nouvelle eau liée est ajoutée, et puis l'intensité de signal augmente avec la quantité d'eau liée adsorbée.

Sur la Fig.3.16 on peut observer premièrement que l'eau liée diffuse plus vite que l'eau libre. Après certain temps, on peut voir clairement que l'eau liée apparaît sur des hauteurs plus élevées que le front d'eau libre. De façon similaire aux profils d'huile de silicone, l'eau liée présente également deux zones : un front incliné en avant (h élevées), puis une zone de saturation (un plateau). Plus précisément, le front devant le plateau indique un gradient de concentration d'eau liée hors de la zone saturée. De plus, l'eau libre semble n'exister que dans la zone de saturation d'eau liée. Il est alors intéressant de comparer l'évolution temporelle du bout du plateau de l'eau liée (fin de la zone saturée) avec la position du front de l'eau libre (déterminé à $0,1g/g$ près)(voir l'insert de la Fig.3.16). La superposition des deux courbes nous révèle que l'avancement de l'eau libre est synchronisé avec la saturation de l'eau liée dans les parois du bois. Nous pouvons par conséquent en déduire que, d'un côté, l'eau liée diffuse plus ou moins indépendamment devant le front de l'eau libre, et de l'autre côté, l'eau libre ne peut exister qu'après la saturation totale de l'eau liée. Cette observation est en cohérence avec le travail de GEZICI-KOÇ et collab. [2017].

Comme nous l'avons déjà montré par l'analyse des résultats macroscopiques, la pénétration de l'eau dans le bois ne semble pas être entraînée par un effet capillaire. Ainsi, on en conclut que la propagation de l'eau libre est finalement contrôlée par la diffusion de l'eau liée dans les parois.

Par ailleurs, des mesures par IRM sont également réalisées sur un échantillon séché dans une étuve à 60°C et sur un échantillon équilibré à 97%HR. Des résultats similaires sont obtenus, comme montré par la Fig.3.17. Ce qui suggère qu'il faut attendre la saturation en eau liée pour que l'eau libre monte dans l'échantillon.

Dynamique de l'eau liée et la déformation Nous avons déjà vu dans la partie des résultats macroscopiques (voir Fig.3.6) que la déformation locale avance sous forme d'un front de propagation. Nous pouvons ainsi remarquer des similitudes avec les profils d'eau liée montrés sur la Fig.3.16. On s'intéresse maintenant à la comparaison entre les deux types de profils présentés sur la Fig.3.18.

En comparant la teneur en eau liée déduite par la déformation et celle issue des pro-

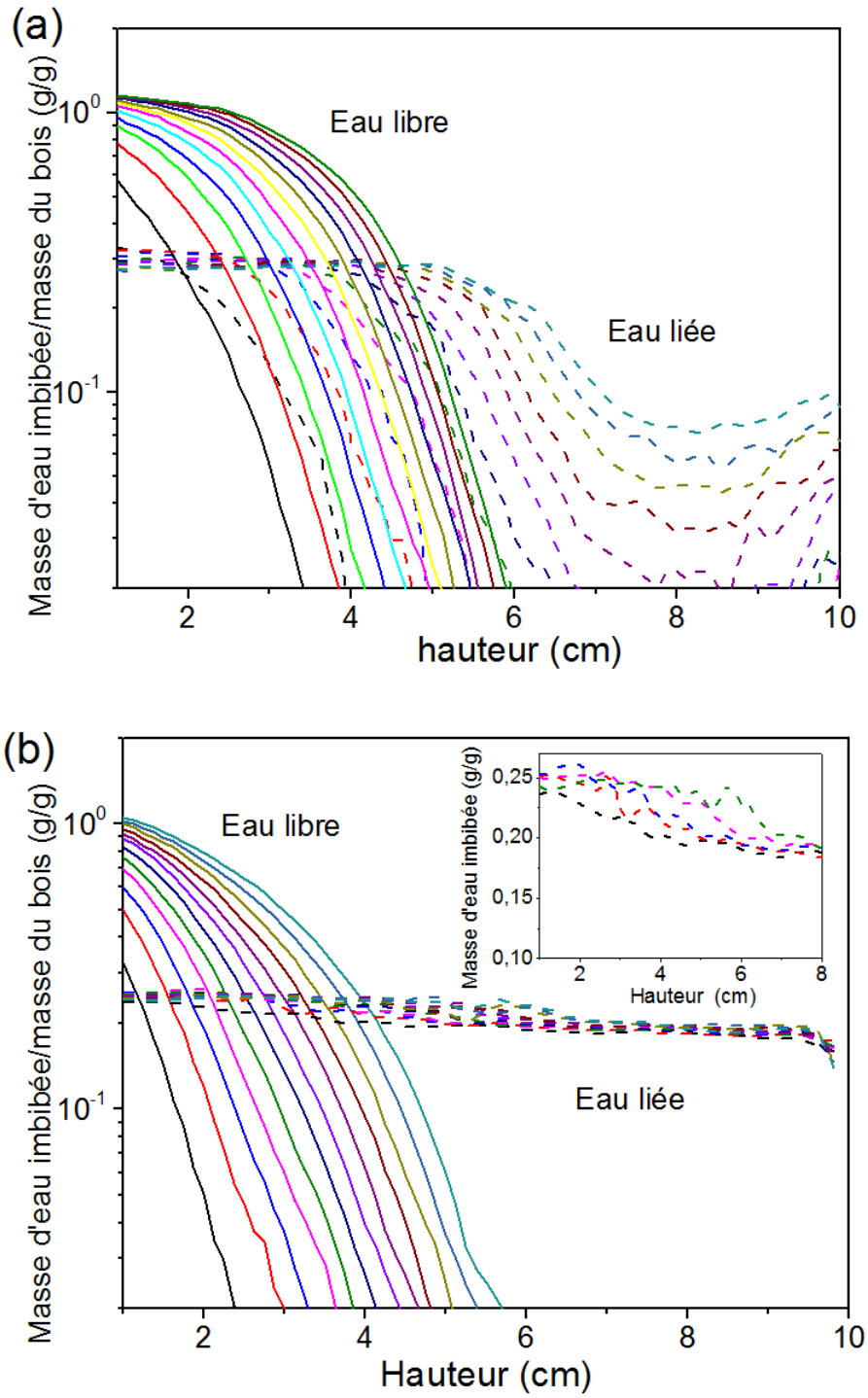


FIGURE 3.17 – **(a)** : distributions d'eau libre (lignes continues) et d'eau liée (lignes pointillées) d'un échantillon séché dans une étuve à 60°C : (de gauche à droite) le premier profil à 3 h, puis les profils sont présentés toutes les 6 h. **(b)** : distributions d'eau libre (lignes continues) et d'eau liée (lignes pointillées) d'un échantillon équilibré à 97 %HR : (de gauche à droite) le premier profil à 3 h, puis les profils sont présentés toutes les 6 h. Dans l'insert, zoom sur la zone du gradient de l'eau liée (pour raison de clarté, les profils sont présentés à 3, 9, 21, 39, 69 h).

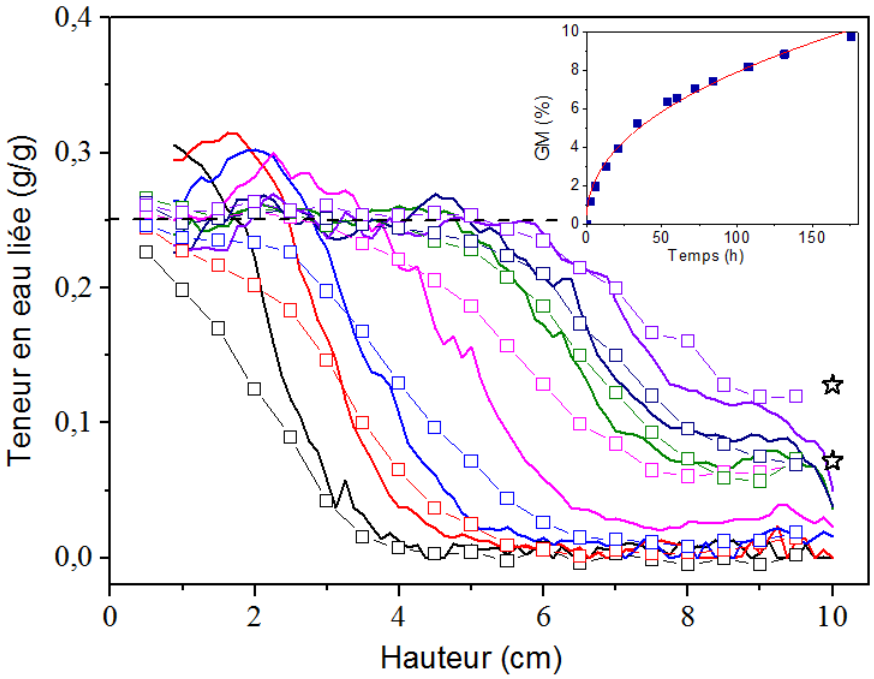


FIGURE 3.18 – Comparaison de profils d'eau liée mesurés par IRM (lignes continues) avec les mesures de déformation (carrés) à différents instants : 1.4, 4.4, 8.3, 23.3, 47.4, 58.5, 70.5 h. La ligne pointillée montre le niveau du plateau de l'eau liée (ce qui indique aussi la valeur estimée du PSF à 25% MC). Les deux symboles en forme d'étoile montrent l'augmentation de la quantité d'eau liée due au changement de HR de 55 à 97%, au bout d'un jour et de trois jours respectivement. Dans l'insert : Cinétique d'adsorption d'un échantillon ($2 \times 2 \times 2\ cm^3$) lorsque HR change de 55 à 97% : gain en masse (GM, %) en fonction du temps. La ligne rouge est un fit $GM = 1,06 \times t^{0,437}$ avec t en heure.

fils IRM (voir Fig.3.18), nous constatons que la forme et le timing des deux types de profils sont similaires. Bien que la séquence multi-échos d'IRM ne permette de mesurer qu'une partie de l'eau liée, la distribution d'eau liée obtenue peut être étudiée de manière qualitative.

Il est important de rappeler que pour les tests d'imbibition à l'IRM, le système est couvert par du parafilm pour éviter le séchage pendant la durée d'expérience. Ceci a un impact direct sur l'humidité relative de l'environnement dans lequel l'échantillon est exposé. Cet effet est pris en compte dans l'analyse suivante de la dynamique de l'eau liée.

Le transfert d'eau liée dans le bois s'effectue de deux manières, soit par diffusion au sein de la phase solide (parois cellulaires) soit par adsorption de vapeur d'eau dans les lumens. Comme le système (bassin + échantillon) est confiné, l'humidité relative dans l'air autour de l'échantillon s'approche rapidement de 100%. Cela a alors deux principales conséquences : (1) l'adsorption de vapeur d'eau peut avoir lieu sur les parois dans les passages ouverts (i.e. les vaisseaux) le long de toute la longueur de l'échantillon; (2) le transport d'humidité dans l'air dû au gradient de densité de vapeur dans les lumens est négligeable. Dans ces conditions, on observe que l'augmentation de la teneur en eau liée est presque homogène en 1D, avec une légère hausse aux deux extrémités de l'échantillon, comme montré dans les travaux de DVINSKIKH et collab. [2011]; FRANDSEN et collab. [2007]; HAMEURY et STERLEY [2006]. Afin de déterminer la cinétique d'adsorption dans notre cas, un échantillon de $2 \times 2 \times 2\ cm^3$ est placé de 55% à 97% HR. Son évolution en masse est mesurée au cours du temps. On définit le gain en masse (GM) :

$$\mathrm{GM} = \frac{m(t) - m_0}{m_0} \times 100\% \tag{3.3}$$

où $m(t)$ est la masse de l'échantillon à temps t, m_0 la masse de l'échantillon dans l'état initial (à 55% HR).

La cinétique d'adsorption est montrée dans l'insert de la Fig.3.18. Avec cette courbe, nous pouvons estimer le gain de masse au bout de 1 et 3 jours au cours de l'imbibition dans le système confiné. Il semble que le timing d'augmentation de teneur en eau liée (montrée par les profils IRM ou par les mesures de déformations, voir Fig.3.18) correspond bien à l'estimation de la quantité d'eau absorbée à 97% HR à partir de la cinétique d'adsorption (symboles d'étoiles à droite sur la Fig.3.18). En première approximation, on peut en déduire qu'en absence d'eau libre, la distribution d'eau liée devrait augmenter de façon homogène, avec un timing similaire à celui que nous observons dans la partie supérieure. Cette hypothèse peut être confirmée par les profils de déformation à l'air ambiant sans confinement (voir Fig.3.6), où on peut voir la disparition du plateau dans la partie supérieure.

Au contraire, pour le reste des profils d'eau liée, i.e. au-dessous de 8 cm sur la Fig.3.18 ou la Fig.3.16, on voit une quantité d'eau liée significative qui ne peut pas être simplement expliquée par l'adsorption de vapeur présente dans les lumens. Que l'imbibition s'effectue dans des conditions à HR élevées ou non, les caractéristiques majeures de la

pénétration de l'eau liée sont observées : une zone de saturation au niveau du PSF et un front de propagation indiquant un gradient de concentration d'eau liée. La seule explication que nous pouvons proposer actuellement pour cette tendance, est que l'eau liée est majoritairement absorbée à partir de la phase liquide présente dans les lumens, formant ainsi quasi-simultanément un plateau de saturation. Puis elle diffuse longitudinalement dans les parois cellulaires vers le haut de l'échantillon en raison du gradient de concentration d'eau liée.

3.2.5 Discussions et Conclusion

Nous avons étudié séparément les dynamiques d'eau liée et d'eau libre par IRM. Les résultats obtenus mettent en évidence que :

1. la diffusion d'eau liée est plus rapide que le processus d'imbibition d'eau libre dans les lumens ;
2. l'eau libre n'apparaît que dans les endroits où les parois sont saturées en eau liée.

Nous en concluons que l'ensemble de la dynamique d'imbibition est dominée par la diffusion d'eau liée dans les parois. Le taux d'imbibition capillaire attendu avec un angle de contact et une perméabilité estimée à partir de la structure du matériau n'est finalement pas observé. Puisque nous avons montré avec l'huile de silicone que l'eau liée n'a pas altéré la structure du bois (fermeture des passages pour le fluide, etc), cela suggère un effet physique fondamental induit par l'interaction entre l'eau liée adsorbée dans les parois et l'eau libre en contact avec les parois. Cela suggère un effet particulier au niveau de la ligne de contact qui est la ligne à l'intersection des trois phases : air-eau-paroi. Un mécanisme physique général se produisant à ce niveau serait cohérent avec les observations macroscopiques, quelle que soit quelle échelle de temps (d'un dixième de seconde à plusieurs jours), l'effet capillaire est réduit significativement dès le premier contact du bois avec de l'eau.

Nous avons maintenant une vision plus claire du processus d'imbibition dans le bois. Puisque le taux de montée capillaire dépend de la condition de mouillage, cette dernière pourrait être modifiée par l'adsorption d'eau dans les parois autour de la ligne de contact. Ceci aurait deux conséquences : l'effet capillaire serait réduit, empêchant l'avancement rapide de l'eau libre ; et l'eau liée diffuserait ensuite indépendamment dans les parois. Enfin, compte tenue des observations à partir des mesures de temps de relaxation, on peut supposer que, l'eau libre envahirait d'abord les vaisseaux, puis s'infiltrerait progressivement dans les fibres.

Afin de comprendre ce qui se passe au sein de l'échantillon au cours de l'imbibition, il convient ensuite d'observer directement les interfaces eau-air au sein du bois pendant l'imbibition.

3.3 Observations par microtomographie aux rayons X

Le but de cette partie d'étude est principalement d'examiner les conditions de mouillage à partir des observations locales à l'échelle des interfaces liquide-gaz et la répartition de l'eau dans les vaisseaux et dans les fibres. Sauf mention spéciale, les images µTRX présentées dans cette section ont été acquises sur un échantillon de charme. L'expérience a été effectuée dans le cadre du projet (proposal n°20141433) sur la ligne PSICHE du centre de rayonnement synchrotron SOLEIL.

Nous avons vu au chapitre 1 que le charme et le peuplier ont une structure similaire, ce qui nous permettra d'étendre les conclusions au charme que nous avons obtenues avec le peuplier.

3.3.1 Protocole d'observation

Comme présenté dans la section 2.4.2, une bonne partie de l'échantillon étudié a été immergé dans l'eau (voir Fig.2.39). Dans le volume d'intérêt (VOI) où nous allons effectuer les observations par la suite, l'échantillon est entouré d'eau liquide. Cela implique que dans le VOI l'échantillon est en contact avec de l'eau non seulement le long de la surface inférieure mais aussi le long des faces verticales (plans RL et TL). Les conditions d'imbibition ne sont donc pas les mêmes selon la localisation au sein de l'échantillon. En analysant les images, on peut alors définir deux zones nommées A et B, voir Fig.3.19 :

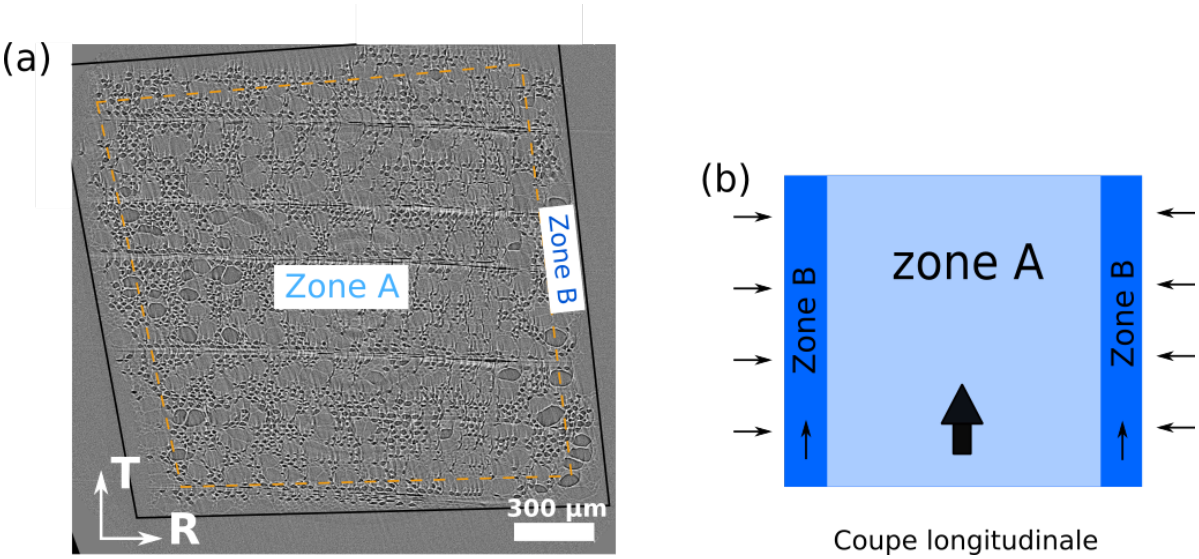


FIGURE 3.19 – Définition des zones A et B : **(a)** Une image dans le plan RT. Le cadre noir encadre une coupe RT de l'échantillon. Hors du cadre : eau dans le récipient. Les lignes pointillées définissent la zone A au milieu de l'échantillon et la zone B qui contient les bords verticaux d'épaisseur environ ~ 100 μm; **(b)** Illustration des deux zones dans une coupe longitudinale. Les flèches indiquent les directions de transfert d'humidité.

— La zone A est la zone au centre de l'échantillon où l'eau liquide monte par les ouvertures des lumens de la surface inférieure de l'échantillon. La montée des interfaces eau-air dans les vaisseaux est observée selon la direction longitudinale (voir

Section 3.3.3.2). Nous considérons donc que l'imbibition est unidirectionnelle dans cette zone et la pénétration d'eau n'est pas influencée par les effets de bords.

— La zone B est constituée de quatre fines couches verticales (épaisseur d'environ 100 μm) qui sont en contact direct avec de l'eau. Cette zone comprend les quatre faces verticales, sur lesquelles on peut observer les rugosités de surfaces induites par la préparation de l'échantillon. Les fibres et les vaisseaux de l'échantillon ne sont pas tout à fait perpendiculaires au plan de découpe, donc sur les surfaces verticales l'eau se trouve au contact de fibres et de vaisseaux aux ouvertures et peut y entrer. Dans cette zone l'eau pénètre donc non seulement par le bas, mais aussi selon les directions transversales depuis l'extérieur. Ceci est l'origine de la formation de bulles dans les vaisseaux dans cette zones (voir Section.3.3.3.1).

Il faut noter que la délimitation exacte des deux zones n'est pas possible et leur définition reste qualitative. Cependant, comme nous verrons dans les sections suivantes, les observations sont bien différentes dans les zones A et B, ce qui confirmera la pertinence de cette distinction.

Il faut noter qu'en raison de l'inclinaison des vaisseaux par rapport au plan de découpe, les trois plans dont nous parlons ici ont un petit angle d'inclinaison par rapport aux trois plans définis habituellement en science du bois. Par souci de simplification, on conserve cependant ici les appellations de plan "RT", "TL" et "RL".

Les observations s'effectuent principalement dans le plan "TL". Pour cela, nous réalisons des coupes "TL" à partir des données d'imagerie 3D, tous les 50 pixels (soit 65 μm) le long de la direction radiale. Cet intervalle entre les coupes est de l'ordre de grandeur du diamètre des vaisseaux, nous permettant ainsi d'observer une grande majorité de vaisseaux dans le VOI.

3.3.2 Premières observations dans le plan "RT"

Avant de commencer l'analyse des images, il convient d'abord de regarder l'état de référence, i.e. l'échantillon à l'état sec avant l'expérience d'imbibition.

La Fig.3.20 montre une coupe transversale de l'échantillon à l'état sec, sur laquelle nous pouvons identifier les caractéristiques de la structure du charme, comme nous avons vu dans la section 1.2.2.2. Sur les images µTRX, la phase solide du bois, en raison de sa densité, est représentée par un niveau de gris plus clair que les phases d'air et d'eau. Sur la Fig.3.20 nous pouvons facilement identifier les lumens des vaisseaux (les grands pores) et les lumens des fibres (les petits pores). Par ailleurs, nous pouvons détecter la présence de rayons ligneux, qui se présentent sous la forme de chaînes de cellules horizontales (indiquées par les flèches vertes sur la Fig.3.20). Conformément au fait que le charme est un feuillu à pores diffus, à ce passage on note que la distribution et la taille de vaisseaux sont bien homogènes au sein du cerne. Finalement, aux quatre bords de l'échantillon, on remarque que les parois des vaisseaux sont abîmées (indiquées par les flèches jaunes sur la Fig.3.20), laissant des ouvertures pour l'entrée d'eau pendant l'imbibition. Ceci expliquera dans l'analyse suivante pourquoi la pénétration de l'eau dans la zone des bords est

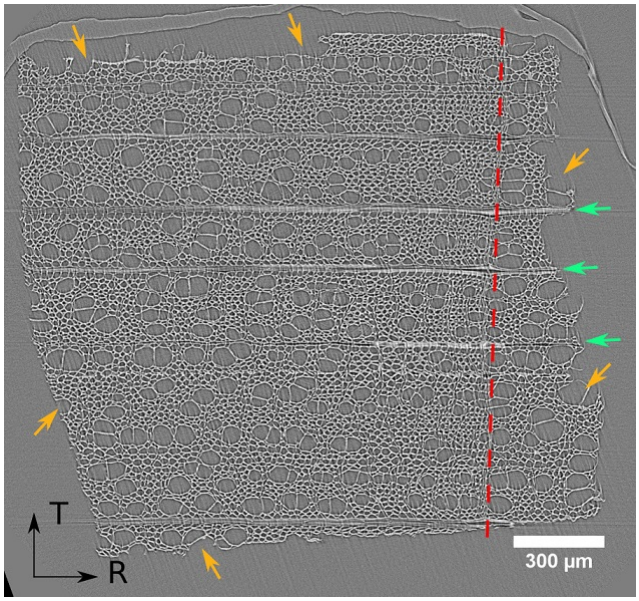


FIGURE 3.20 – Image dans le plan RT avant imbibition. On peut identifier les éléments structuraux du charme : vaisseaux (grands pores), fibres (petits pores), rayons ligneux (flèches vertes). La ligne rouge indique une limite de cerne. Les flèches rouges montrent des parois abîmées des vaisseaux sur les bords (zone B), qui permettent l'entrée d'eau au cours de l'imbibition.

différente du centre de l'échantillon.

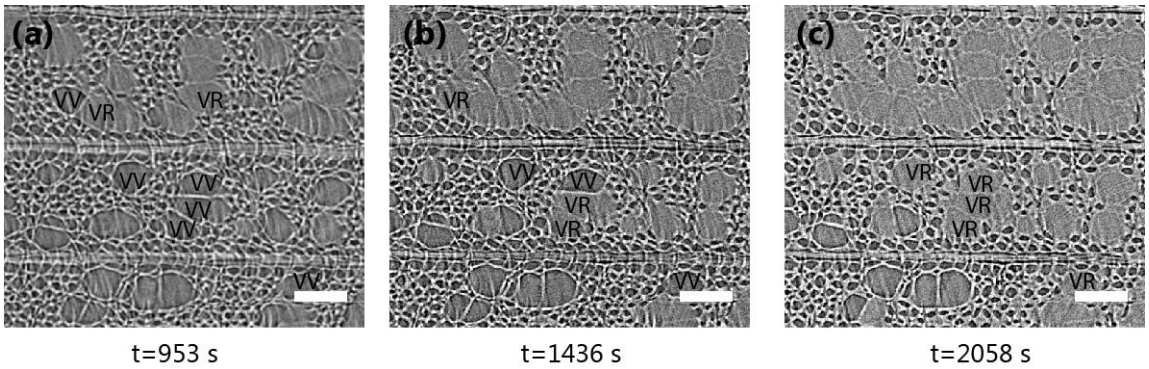


FIGURE 3.21 – Série d'images dans le plan RT au milieu de l'échantillon pendant l'imbibition : (a) 953 s, (b) 1436 s, (c) 2058 s. Quelques vaisseaux vides (VV) et vaisseaux remplis d'eau (VR) sont indiqués sur les images. Barre d'échelle : 100 μm.

Après avoir identifié les différents éléments de la structure de l'échantillon, nous pouvons maintenant observer une séquence d'images dans le plan RT à différents instants. Sur la Fig.3.21 nous pouvons suivre l'évolution de la distribution d'eau dans le plan transversal. Le niveau de gris pour l'eau est plus clair que celui de l'air, on observe ainsi que les lumens remplis d'eau apparaissent plus clairs que les lumens vides. À noter que le contraste sur l'image aux temps courts (Fig.3.21.a) n'est pas très fort, probablement à cause de l'évolution rapide de l'humidité au début de l'expérience par rapport à la durée du scan (~ 8 min). En revanche, on peut constater que le contraste s'améliore au cours du

temps, et un meilleur contraste est obtenu sur la Fig.3.21.c, où les vaisseaux remplis d'eau et les vaisseaux vides sont facilement distingués.

En général, nous observons (voir Fig.3.21) que l'eau se trouve principalement dans les vaisseaux, tandis que la plupart des fibres sont vides. Cela confirme notre hypothèse, basée sur la structure du feuillu, que l'imbibition s'effectue principalement dans les vaisseaux. Au cours du temps, l'eau envahit progressivement les vaisseaux : le nombre de vaisseaux remplis d'eau (VR) augmente. Quant aux fibres, nous remarquons un aspect intéressant : bien que la plupart des fibres soient vides, les fibres autour des vaisseaux remplis sont majoritairement aussi remplies d'eau. Considérant que les fibres ont une structure fermée qui ne leur permet pas un contact direct avec la principale source d'eau liquide, on peut se demander si l'eau dans les fibres provient de l'eau dans les vaisseaux.

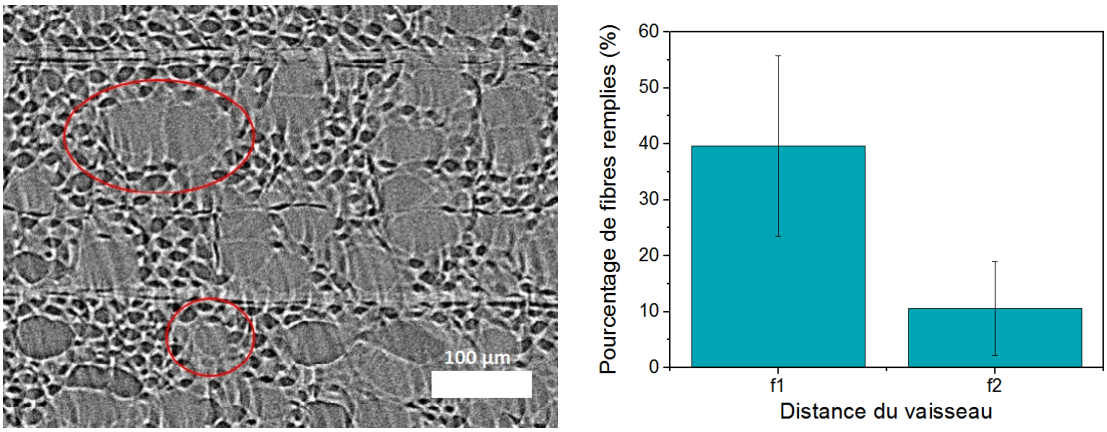


FIGURE 3.22 – **A gauche** : Deux exemples de vaisseaux pour étudier le transfert d'eau depuis les vaisseaux vers les fibres. Indiqués par deux cercles rouges, on voit un vaisseau solitaire imbibé et isolé (en bas) et deux vaisseaux accolés qui sont remplis et isolés (en haut). **A droite** : Pourcentage de fibres remplies en fonction de la distance d'un vaisseau rempli d'eau.

Pour répondre à cette question, nous avons examiné quelques vaisseaux remplis d'eau isolés (séparés d'autres vaisseaux d'une distance d'au moins quatre fibres, voir Fig.3.22). Comme pour le charme, les vaisseaux sont souvent accolés (formant un "cluster"), dans ce cas on considère le "cluster" comme un seul vaisseau (voir la figure de gauche de la Fig.3.22). Nous avons mesuré la proportion de fibres remplies d'eau en fonction de la distance par rapport au vaisseau étudié (l'unité de distance s'exprime en nombre de fibres) et le résultat est montré sur la Fig.3.22 . Nous observons clairement que la proportion de fibres imbibées diminue lorsque la distance au vaisseau imbibé augmente d'une première couche de fibres (f1) à une deuxième couche (f2). Ce résultat montre que la probabilité d'avoir une fibre imbibée dépend de la position de cette fibre par rapport à un vaisseau proche déjà rempli d'eau. Ces observations semblent confirmer l'existence de deux étapes dans l'imbibition dans un feuillu : d'abord une pénétration rapide et longitudinale dans les vaisseaux, puis un transfert transversal depuis les vaisseaux vers les fibres.

3.3.3 Formes des interfaces eau-air

Les observations dans le plan RT nous permettront d'avoir une vision globale de l'évolution de la distribution d'eau au cours de l'imbibition. En revanche, pour étudier la dynamique d'imbibition ainsi que les conditions de mouillage au sein des vaisseaux, il faut maintenant effectuer des observations dans la direction longitudinale.

Comme expliqué précédemment, les conditions d'imbibition sont différentes sur les bords (zone B) ou au milieu de l'échantillon (zone A). L'observation et la discussion seront présentées successivement pour chaque cas.

3.3.3.1 Zone B : immersion totale

Une coupe TL dans la zone B (voir Fig.3.23) montre que presque tous les vaisseaux sont partiellement remplis d'eau, laissant des bulles d'air coincées au milieu. La présence de ces bulles confirme notre hypothèse : sur les bords où les parois sont abîmées, pour un vaisseau donné, la pénétration d'eau peut s'effectuer par les deux extrémités. En conséquence, l'air initialement présent ne peut pas s'échapper rapidement, formant ainsi des bulles.

L'observation d'une interface de bulle d'air dans les trois plans (voir Fig.3.23) montre un ménisque avec un petit angle de contact ($\sim 30°$). Cela signifie un bon mouillage entre l'eau et la paroi des vaisseaux. Cependant, ces observations ne reflètent probablement pas ce qui se passe dans la zone A.

3.3.3.2 Zone A : imbibition longitudinale

On suppose que, dans cette zone, en s'éloignant des bords l'imbibition s'effectue seulement selon la direction longitudinale. Étant donné que le milieu n'est pas homogène et que le nombre des vaisseaux est élevé, nous effectuons ici une étude statistique pour l'observation des caractéristiques des interfaces dans les vaisseaux.

Nous observons 48 interfaces au total, dont 44 interfaces planes (soit 91%) indiquant un angle de contact proche de 90°, et 4 interfaces (9 %) courbées comme dans le cas de la zone A. Les 4 interfaces courbées se trouvent toutes à proximité de la zone A où l'humidité risque d'être localement plus élevée.

Examinons de plus près les 44 interfaces planes. Nous constatons parmi elles deux types : (i) des interfaces horizontales ou légèrement inclinées du fait de l'inclinaison des vaisseaux, (ii) des interfaces droites mais très penchées.

La Fig.3.24 montre l'observation de telles interfaces dans une coupe TL. Nous remarquons que les conditions de mouillage dans la zone A sont très différentes de celles dans la zone B où l'on voit des interfaces courbées autour de bulles d'air. Sur la Fig.3.24, les interfaces se présentent sous forme de ligne droite dans le plan TL. Afin de vérifier la forme plane de ces interfaces, nous en observons une dans les trois plans perpendiculaires. Imaginons d'abord un ménisque classique avec un petit angle de contact dont la surface est proche d'une demi-sphère. Si on réalise une coupe transversale à travers l'interface

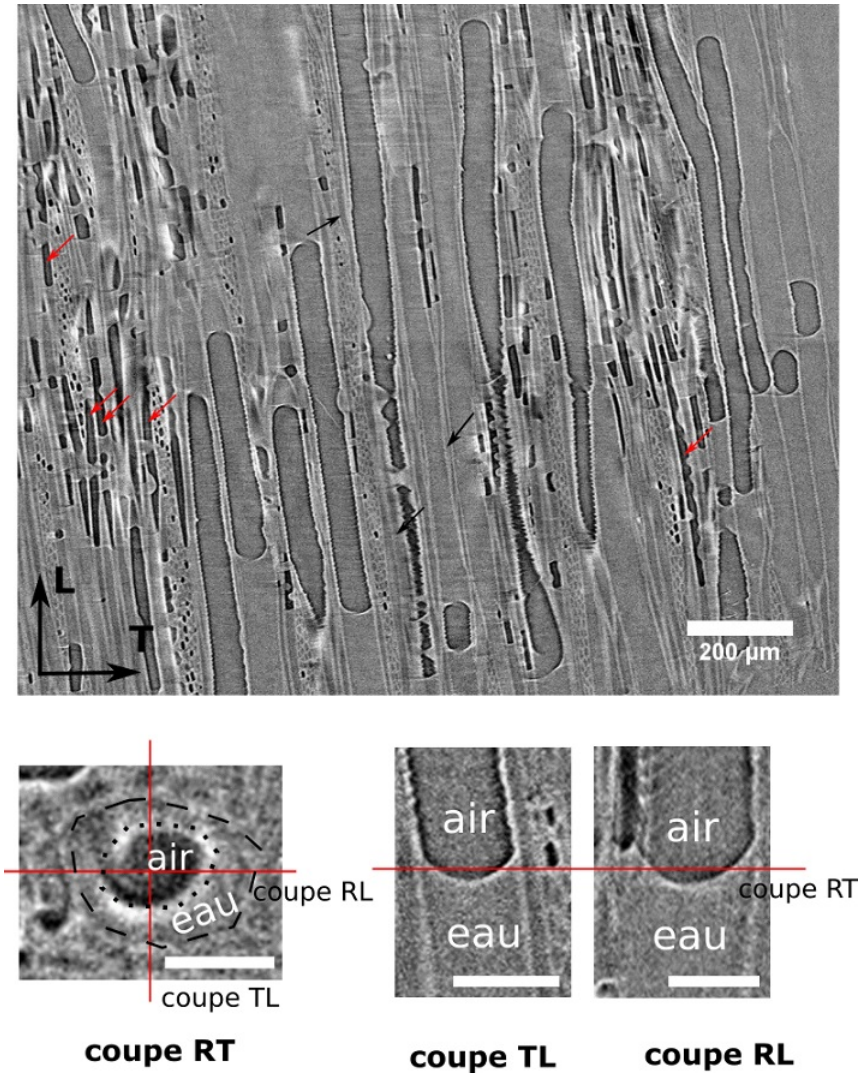


FIGURE 3.23 – **En haut** : Coupe TL dans la zone B. Les bulles sont visibles dans plusieurs vaisseaux. Les fibres sont totalement remplies d'eau libre (flèches noires) ou partiellement remplies (flèches rouges). **En bas** : Observation dans les trois plans d'anisotropie d'une interface air-eau dans un vaisseau. Dans le plan RT, le ménisque air-eau est indiqué par des points et la paroi du vaisseau est indiquée par la ligne pointillée. Barre d'échelle : 50 μm.

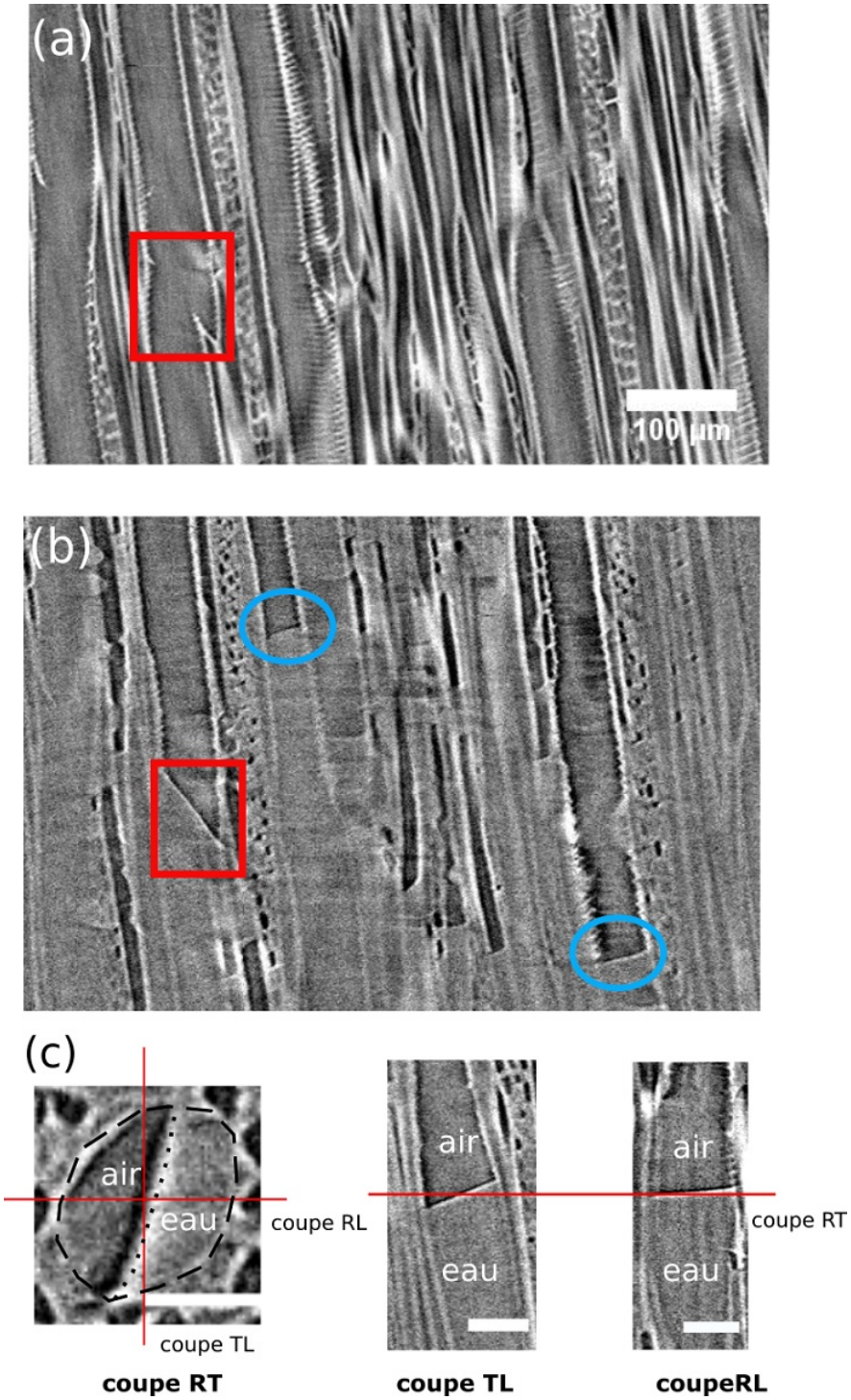


FIGURE 3.24 – **(a, b)** : Coupe TL dans la zone A avant (a) et après l'imbibition (t=1436 s, (b)). Les cercles montrent deux interfaces planes qui avancent, tandis que le rectangle montre une interface penchée au niveau d'une perforation. Notons qu'à cause du gonflement pendant l'imbibition, les structures de (a) et (b) sont légèrement différentes. **(c)** : Observation d'une interface plane dans les trois plans d'anisotropie. Dans le plan RT, l'interface air-eau est indiquée par des points ronds et la paroi du vaisseau est indiquée par la ligne pointillée. Barre d'échelle : 50 μm.

courbée, sur cette coupe RT on observera alors un film d'eau sous forme de couronne attachée à la paroi du vaisseau, laissant de l'air au milieu de la section (voir Fig.3.23). Au contraire, dans le cas où l'interface est plane et légèrement penchée (ce qui est souvent le cas puisque les vaisseaux eux-mêmes sont un peu inclinés), sur une coupe RT la phase d'air et la phase d'eau sont séparées l'une de l'autre par une simple ligne droite (voir Fig.3.24.c). Cette forme est encore plus évidente sur les deux coupes longitudinales où l'interface est observée perpendiculairement à l'axe du vaisseau.

Cette observation originale suggère que dans la zone A, le mouillage est très « mauvais », i.e. l'angle de contact entre l'eau et la paroi de vaisseaux est proche de 90°. Dans ce cas, l'effet capillaire qui est responsable du mouvement d'eau liquide est très faible, les interfaces peuvent être facilement bloquées à cause des irrégularités des parois. En examinant la structure du bois à l'état sec, nous remarquons que les perforations simples entre éléments de vaisseaux sont à l'origine de la forme des interfaces penchées. Ceci explique pourquoi nous observons parfois des interfaces droites mais penchées (voir Fig.3.24, montré par le rectangle rouge) : une interface est bloquée au niveau d'une perforation et s'adapte à la forme de la dernière.

L'observation de ces interfaces planes apporte un élément de réponse à l'origine du ralentissement de l'imbibition de l'eau : avec cet angle de contact passant d'une valeur faible à proche de 90°, l'effet capillaire est significativement réduit pendant l'imbibition ; le flux d'eau liquide voit sa force motrice considérablement réduite. En revanche, cela nous pose une nouvelle question : comment avancent-elles ? L'analyse suivante a pour objectif de répondre à cette question.

3.3.4 Dynamique des interfaces planes

Les images successives acquises à différents instants au cours de l'imbibition nous permettent d'étudier la dynamique des interfaces à la fois qualitativement et quantitativement. En suivant l'évolution des positions d'interfaces, nous trouvons un résultat surprenant : il apparaît que les comportements des interfaces sont « chaotiques » (voir Fig.3.26 et Fig.3.27 plus tard). Parmi les 44 interfaces étudiées, nous pouvons distinguer plusieurs situations :

— 80% d'interfaces planes montent progressivement dans la direction d'imbibition, mais avec des vitesses très variées non seulement entre différentes interfaces, mais aussi entre différents instants pour une interface donnée ;

— des interfaces planes avancent au début, mais si elles rencontrent des perforations, elles ont une certaine probabilité d'être bloquées et leur forme s'adapte aux irrégularités des perforations. Dans ce cas, on observe alors des interfaces penchées avec une vitesse apparente égale à zéro ;

— 5 interfaces sont penchées et bloquées pendant un certain moment, mais elles se débloquent finalement et avancent avec une vitesse très élevée par rapport à la vitesse moyenne ;

— 2 interfaces planes se trouvant à la limite des deux zones se transforment en des ménisques avec un petit angle de contact, comme montrées sur la Fig.3.25.

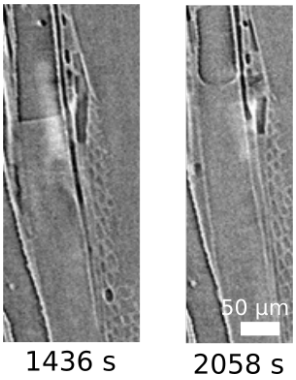


FIGURE 3.25 – Évolution de la forme d'une interface à deux temps différents.

Nous pouvons observer les comportements typiques décrits ci-dessus sur la Fig.3.26, où trois interfaces avancent et une interface est bloquée par une perforation.

Afin d'étudier la dynamique de ces interfaces de manière plus quantitative, nous mesurons leur position sur différentes images. Connaissant l'intervalle de temps entre chaque acquisition d'image, nous pouvons calculer les vitesses de montée apparentes. Les résultats des 44 interfaces étudiées sont présentés sur la Fig.3.27. Malgré la diversité des valeurs observées, la vitesse de l'avancée des interfaces est estimée entre 0 et $0,5\ \mu m/s$. Ces valeurs sont finalement compatibles avec le taux d'imbibition macroscopique : avec une vitesse de $0,5\ \mu m/s$, l'interface parcourt une distance de $h = 0,5 \times 3600 \times 24\ \mu m \approx\ 4,3\ cm$ au bout d'un jour, valeur cohérente avec les profils IRM sur la Fig.3.16, où nous voyons que le front d'imbibition se situe entre 4 et 5 cm.

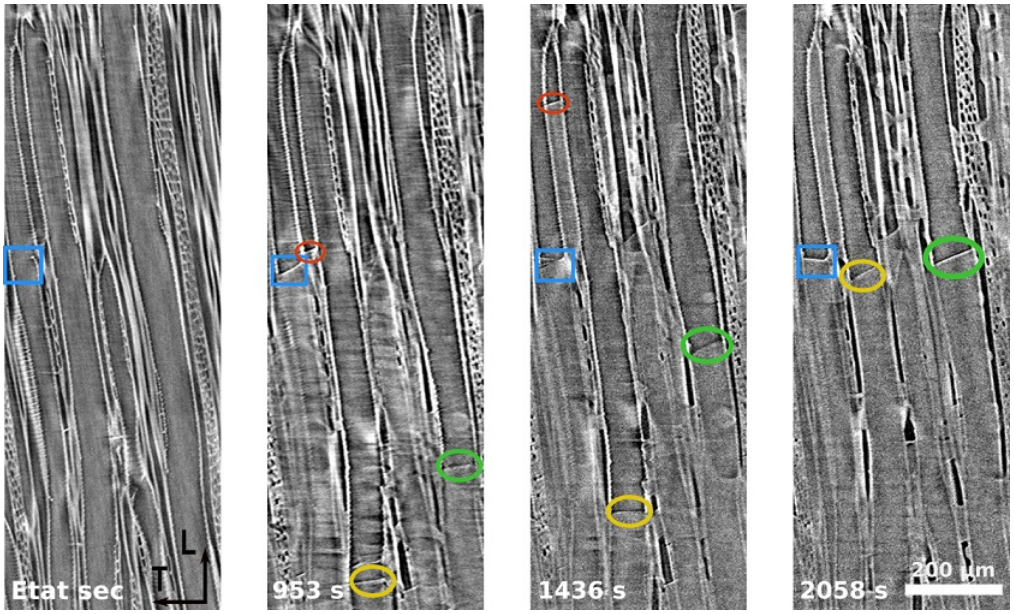


FIGURE 3.26 – Séquence d'images montrant les comportements différents de quelques interfaces : des interfaces planes qui avancent à des vitesses différentes (cercles), et une interface penchée qui est bloquée par une perforation (rectangle). Sur la dernière image, l'interface semble dépasser la perforation et devient horizontale.

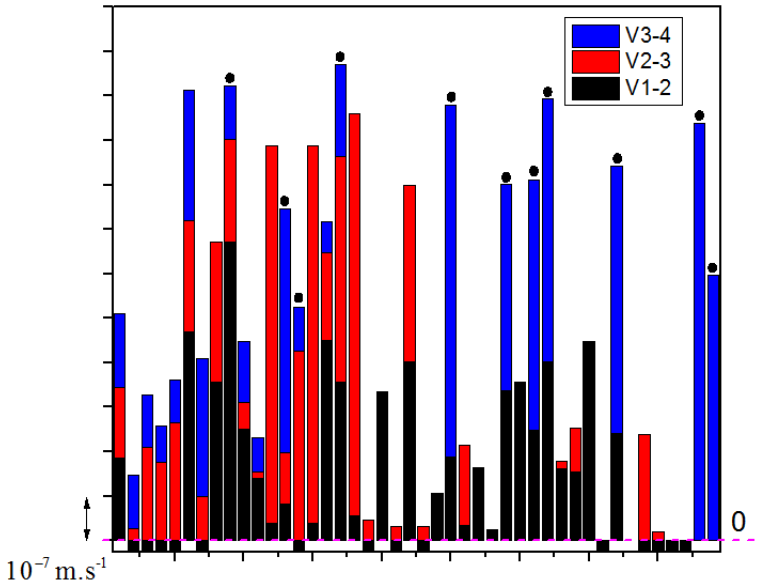


FIGURE 3.27 – Histogrammes montrant la distribution des vitesses apparentes des 44 interfaces observées. V_{i-j} indique la vitesse apparente entre l'image i et l'image $i+1$. La valeur de vitesse correspond à la longueur des colonnes. A noter que les quelques vitesses négatives de V_{1-2} signifient que sur l'image 1 les interfaces se trouvent hors de la zone d'observation (à des hauteurs trop basses). Les points ronds correspondent à la limite inférieure de V_{3-4} car certaines interfaces sur l'image 4 se situent au-delà de la limite supérieure de l'image.

3.3.5 Pénétration dans les fibres

Avec les résultats de RMN et d'IRM présentés dans la section 3.2, nous avons vu que malgré la structure confinée, l'eau peut atteindre les fibres tandis que l'huile ne semble pas être en capable. Munis des images µTRX, nous avons maintenant beaucoup d'éléments pour comprendre la manière dont l'eau pénètre dans les fibres.

La Fig.3.28 montre une série d'images sur lesquelles nous pouvons observer le processus de l'invasion d'eau dans les fibres. Nous choisissons un vaisseau qui est déjà rempli d'eau (l'interface eau-air est au-delà de la zone d'observation) et observons deux fibres adjacentes du vaisseau dans la direction radiale. Au début (Fig.3.28.a), nous pouvons constater la présence de quelques gouttes d'eau sur la paroi commune entre la première fibre (f1) et le vaisseau, tandis que la fibre qui se trouve plus loin (f2) est pour l'instant encore vide. Puis à l'étape suivante (Fig.3.28.b), les gouttes d'eau grossissent et forment finalement des ponts dans f1. On voit alors apparaître des gouttes d'eau sur la paroi de f2. Finalement (voir Fig.3.28.c), l'invasion d'eau dans les deux fibres suit le même processus avec un temps de retard, ce qui suggère une direction de transfert depuis le vaisseau vers la fibre 1 puis la fibre 2. Cette observation est cohérente avec la Fig.3.22 qui montre que dans le plan RT le taux de remplissage des fibres diminue au fur et à mesure qu'on s'éloigne d'un vaisseau rempli.

En conclusion, la pénétration d'eau libre dans les fibres s'effectue de manière dif-

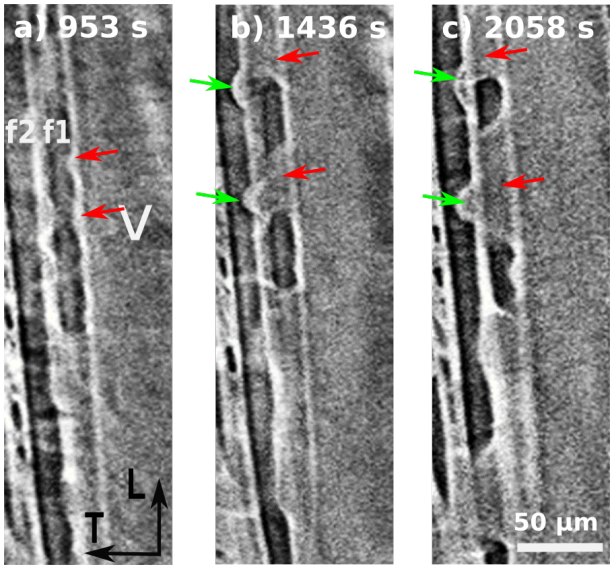


FIGURE 3.28 – Série d'images à différents instants montrant comment l'eau envahit les lumens des fibres adjacentes à un vaisseau rempli d'eau. L'interface air-eau dans le vaisseau est au-delà du bord supérieur de l'image. V : vaisseau rempli d'eau ; f1 : première fibre adjacente au vaisseau ; f2 : deuxième fibre situant plus loin. **(a)** : t = 953 s, f1 est partiellement remplie d'eau où on voit quelques gouttes d'eau sur la paroi (flèches rouges) ; f2 ne contient pas encore d'eau liquide. **(b)** : t = 1436 s, dans f1 : les gouttes d'eau grossissent et forment des ponts ; dans f2 ; quelques gouttes sont visibles sur la paroi partagée avec f1 (flèches vertes). **(c)** : t = 2058 s, l'invasion d'eau se progresse dans f1 et f2.

férente de l'imbibition longitudinale dans les vaisseaux. Néanmoins, une question que nous pouvons nous poser est "est-ce que l'eau libre arrive dans les fibres par les ponctuations fibres/vaisseaux" ? Ou bien est-elle transportée sous forme d'eau liée dans le réseau de parois cellulaires ? Nous avons vu au chapitre 1 que les ponctuations de fibres se trouvent majoritairement dans le plan radial, qui permettent éventuellement des transferts dans la direction tangentielle. Cependant, la Fig.3.22 met en évidence le transfert radial. De plus, comme nous pouvons voir globalement sur le plan RT (voir Fig.3.22), le remplissage de fibres est plutôt homogène et ne semble pas avoir une préférence entre les deux directions. En conséquence, l'eau libre observée dans les fibres semble être finalement transportée sous forme d'eau liée au travers des parois.

3.3.6 Le cas de l'huile de silicone

Un liquide qui n'interagit pas avec le bois, comme l'huile de silicone, nous permet de comprendre comment un liquide se comporte avec la structure du bois considéré comme une matrice rigide non-absorbante. Compte tenu la rapidité du processus d'imbibition d'huile dans le bois par rapport à la durée de scan au microtomographe, les expériences s'effectuent en condition stationnaire, c'est-à-dire que les échantillons sont imbibés d'huile pendant 2-3 minutes, puis ils sont sortis du bain d'huile et installés dans le microtomographe.

Les images sur des échantillons de charme sont acquises par le microtomographe aux

rayons X du laboratoire Navier, avec une résolution de $1,7\ \mu m$. Pour réaliser des expériences similaires sur l'autre essence - le peuplier, une image a été acquise pendant les essais en avril 2018 sur la nouvelle ligne Anatomix du Synchrotron SOLEIL (numéro du proposal : 20171213), avec une taille de voxel de $0,65\ \mu m$.

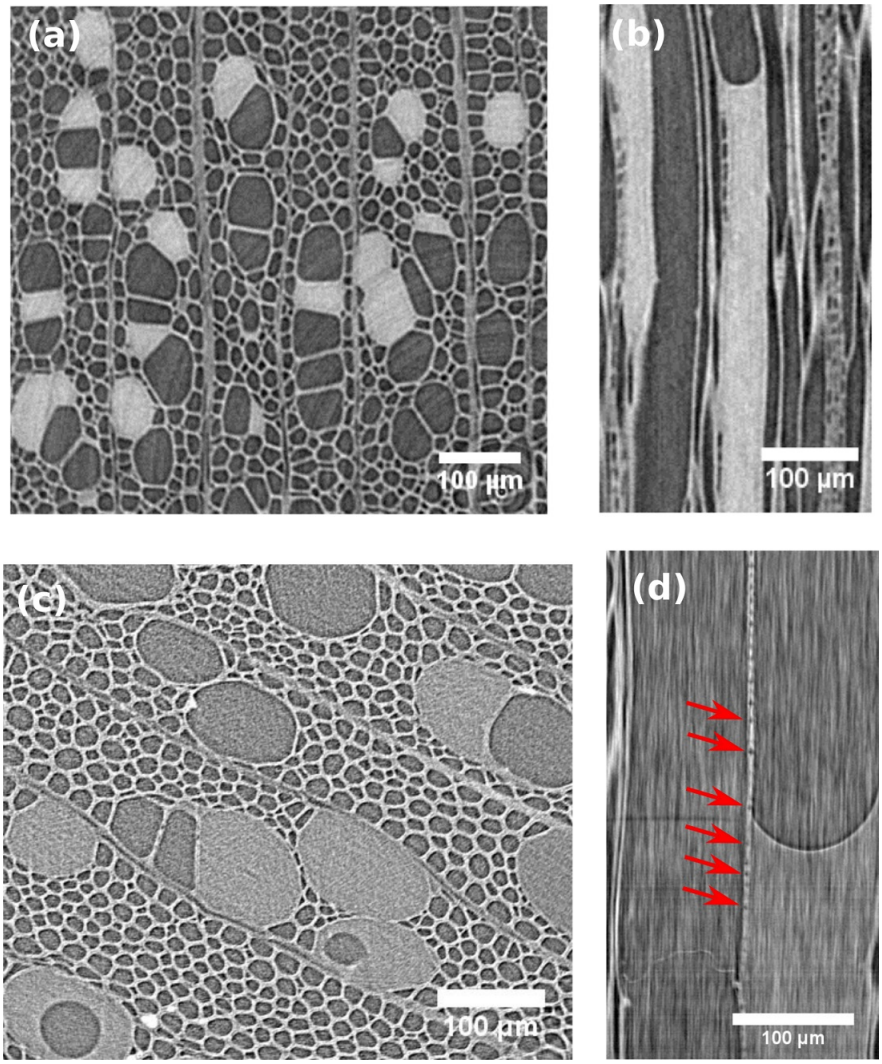


FIGURE 3.29 – Observation de la distribution d'huile de silicone (47V350) dans le charme (a,b) et dans le peuplier (c,d). **(a)** coupe RT de l'échantillon de charme. **(b)** coupe TL de l'échantillon de charme montrant un angle de contact ~ 30° dans un vaisseau qui est entouré de fibres vides. **(c)** coupe RT de l'échantillon de peuplier, où on peut observer le début de deux ménisques. **(d)** coupe RL de l'échantillon de peuplier montrant deux vaisseaux accolés dans la direction radiale, dont un contient de l'huile avec un angle de contact ~ 30°. Les ponctuations intervasculaires sont visibles sur la paroi commune dont certaines sont indiquées par les flèches rouges.

Les images montrant la distribution d'huile de silicone (47V350) après 2-3 minutes d'imbibition dans le charme et le peuplier sont présentées sur la Fig.3.29. De façon générale, nous avons des observations similaires pour les deux essences de feuillu : la pénétration d'huile n'a lieu que dans les vaisseaux, et l'interface air-huile a une forme de

ménisque avec un angle de contact ~ 30°, une valeur qui est cohérente avec les résultats macroscopiques (voir Section.3.1.2). Le comportement de l'huile semble être homogène et nous n'avons pas observé de différence entre les bords et le reste de l'échantillon. Contrairement à l'imbibition d'eau, sur la Fig.3.29 les fibres adjacentes aux vaisseaux remplis d'huiles sont dépourvues d'huile. Compte tenu la durée de scan avec le microtomographe du laboratoire (18-20 h), ce résultat nous indique que les fibres ne sont pas envahies par l'huile et les transferts par les ponctuations sont négligeables (au moins pendant la durée du scan). En revanche, nous avons observé l'apparition d'eau libre dans quelques fibres seulement après quelques minutes (voir Fig.3.28).

Les nouvelles images acquises sur la ligne Anatomix du SOLEIL nous permettent de visualiser les ponctuations avec une taille de voxel plus petite. En raison du nombre réduit de ponctuations dans les fibres, nous observons plutôt les ponctuations intervasculaires, qui sont abondantes et ont *à priori* une structure similaire à celles dans les fibres. La Fig.3.29.d montre deux vaisseaux accolés avec une paroi commune dans laquelle on peut voir des petits points ronds, qui sont en réalité les chambres de ponctuations aréolées. Bien que l'huile pénètre dans un des vaisseaux, l'autre n'est apparemment pas affecté. Cette observation est cohérente avec les travaux de McCully et collab. [2014], dans lesquels les auteurs ont constaté que l'huile ne pénètre jamais dans les ponctuations. Ce résultat est finalement compatible avec le fonctionnement des ponctuations que nous avons pu voir dans le chapitre 1 : le ménisque avec un petit rayon de courbure créé au niveau des ponctuations permet d'empêcher le passage de l'interface air-liquide. Ainsi, nous pouvons supposer le même effet pour l'eau : ayant une tension superficielle plus élevée que l'huile, il est plus difficile pour l'eau de traverser les ponctuations pour arriver dans les fibres.

3.3.7 Discussions et Conclusion

La microtomographie aux rayons X s'avère être une technique utile et complémentaire pour étudier *in situ* le processus d'imbibition dans le bois. Nous avons obtenu des observations intéressantes dont certaines sont aussi originales et qui, à notre connaissance, n'ont été jamais évoquées dans la littérature :

— Des conditions de mouillage différentes sont observées sur un même échantillon : au cours de l'imbibition unidirectionnelle, on observe des interfaces air-eau quasiment planes qui avancent à des vitesses différentes; en revanche, en immersion totale on observe des ménisques classiques avec un petit angle de contact. Cela confirme qu'au cours de l'imbibition unidirectionnelle, un effet a lieu localement qui modifie les conditions de mouillage.

— Les résultats avec l'huile sont cohérents avec les observations macroscopiques : l'huile pénètre principalement dans les vaisseaux avec un angle de contact d'une valeur définie, ce qui explique pourquoi son comportement peut être prédit par la loi de Washburn.

— Les différences entre l'eau et l'huile dans les fibres montrent que les transferts sous forme liquide via les ponctuations sont négligeables. Ceci suggère que l'eau est capable d'arriver dans les lumens de fibres du fait d'un transfert sous forme d'eau liée.

Sur la base de ces observations, nous pouvons vérifier l'idée suggérée à partir des résultats précédents : l'effet capillaire est bien réduit au cours de l'imbibition d'eau. Bien que l'eau liée ne soit pas visible sur les images µTRX, nous avons vu avec les profils IRM que le front de l'eau libre avance avec la zone saturée en eau liée. On peut donc en déduire que le mouillage dépend de la teneur en eau liée dans les parois : en immersion totale où la présence d'eau liquide est homogène, les parois sont probablement déjà saturées en eau liée et dans ce cas nous avons un bon mouillage ; dans le cas où l'eau liquide rencontre une paroi qui peut encore absorber de l'eau liée, le transfert transversal vers la paroi modifie la forme de l'interface eau-air. Le mouvement de la colonne d'eau perd de la force motrice tant que la paroi n'est pas saturée. En revanche, dès que la paroi est saturée, un bon mouillage est restauré et qui ainsi permet à l'interface eau-air de monter un peu plus haut. Cela explique au final pourquoi nous avons à la fois une dynamique d'imbibition très lente et une hauteur élevée de la montée.

3.4 Proposition du mécanisme de transferts d'eau dans le bois de feuillu

Nous avons montré dans ce chapitre avec trois méthodes (mesures macroscopiques, IRM et microtomographie aux rayons X) que, l'adsorption d'eau dans la structure du bois semble être l'origine de la réduction de l'effet capillaire pendant l'imbibition. Sur la base de ces observations, nous pouvons enfin décrire de manière qualitative le processus d'imbibition d'eau dans le bois par un simple schéma (voir Fig.3.30) : l'ascension d'eau par la capillarité dans les vaisseaux est fondamentalement réduite par l'adsorption d'eau liée dans les parois. Une fois que l'eau libre rencontre une paroi non saturée, l'adsorption et la diffusion d'eau liée ont lieu dans la direction d'imbibition (longitudinale) mais également dans les directions transversales. Cela a deux impacts. D'un côté, l'invasion d'eau libre dans les fibres est le résultat de la diffusion d'eau liée transversale. De l'autre côté, lorsque la paroi est saturée en eau liée, l'effet capillaire est restauré et conduit à un petit déplacement de l'interface qui, s'arrête de nouveau lorsqu'elle découvre une nouvelle zone de paroi non saturée. En apparence, l'interface garde sa forme plane en déplacement avec un angle de contact proche de 90°. Le schéma proposé sur la Fig.3.30 illustre le processus de façon simplifiée. Si on se focalise sur la pénétration d'eau dans un vaisseau individuel, il semble que nous observions plutôt un mouvement « chaotique » comme montré par la Fig.3.27. Cependant, compte tenu de l'hétérogénéité du milieu, la pénétration d'eau dans le bois dans l'ensemble montre finalement un comportement cohérent avec les observations expérimentales.

Nous pouvons voir que, le facteur critique dans le mécanisme proposé ci-dessus est la condition de saturation d'eau liée dans les parois. Il semble que nous n'ayons pas besoin d'attendre la saturation complète d'eau liée pour faire avancer l'eau libre. En effet, si on considère que l'adsorption d'eau liée est un processus de diffusion induit par le gradient de concentration, plus la concentration s'approche de la valeur de saturation, plus le processus devient lent. L'interface ne peut jamais avancer si elle doit attendre que la partie de paroi située juste au-dessus d'elle soit complètement saturée. Dans cette condition, il est

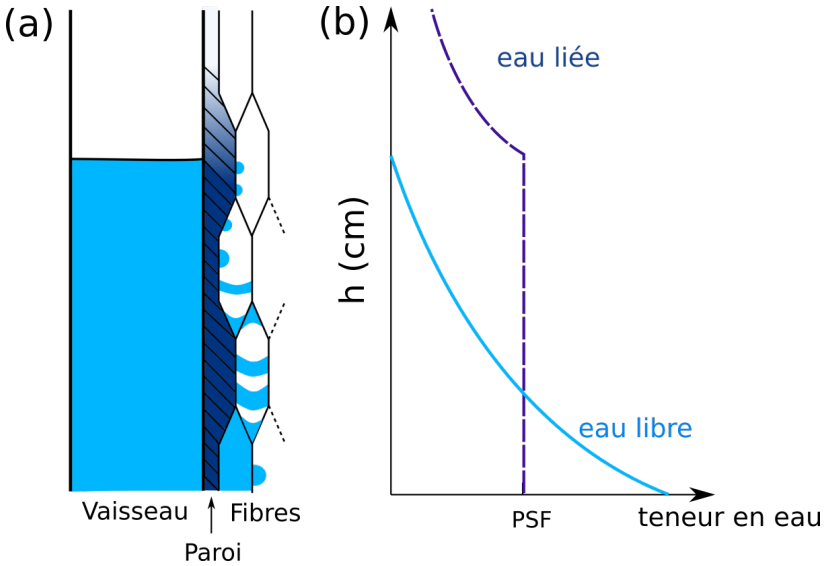


FIGURE 3.30 – **(a)** Schéma illustrant le mécanisme proposé pour le phénomène d'imbibition d'eau dans le bois de feuillu. L'eau libre est indiquée en bleu clair. L'eau liée est représentée par la graduation du bleu foncé au sein de la paroi. Seule la paroi commune entre le vaisseau et les fibres est montrée en détail. **(b)** Distribution de teneur en eau en fonction de la hauteur, correspondant à (a). Notons que la forme des profils est aussi affectée par l'hétérogénéité de la structure du bois.

plutôt raisonnable de définir un seuil critique de concentration d'eau liée (qui est proche de la saturation) à partir duquel l'adsorption dans les parois devient suffisamment lente par rapport à la force capillaire. Malheureusement, il semble impossible de prédire précisément l'avancée d'une interface individuelle car elle est très sensible à des conditions locales : les irrégularités sur les parois affectant la forme de l'interface, l'hétérogénéité de la distribution d'eau liée induite par l'hétérogénéité de l'échantillon, etc.

Finalement le schéma proposé nous permet aussi d'expliquer quelques observations que nous n'avions pas pu expliquer jusqu'à maintenant. Avec la faible force capillaire résultant de l'angle de contact proche de 90°, l'interface peut être facilement bloquée par les irrégularités sur la paroi du conduit, par exemple, une perforation simple (voir Fig.3.24 ou Fig.3.26). De plus, nous avons observé des accélérations pour certaines interfaces (voir Fig.3.27) après une période de blocage. Pendant le blocage de l'interface, l'eau liée continue à diffuser dans la direction d'imbibition. Cela permet à l'interface d'effectuer un long déplacement dans la zone où la concentration d'eau liée aurait déjà atteint le seuil critique.

3.5 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons étudié le phénomène d'imbibition dans le bois de feuillu. Dans un premier temps, nous avons étudié les propriétés macroscopiques de l'imbibition avec deux types de liquide : l'eau et les huiles apolaires. Nous avons pu montrer avec les calculs que, pour un fluide apolaire qui n'interagit pas avec le bois, le modèle de Washburn basé sur la structure du bois nous permet de prédire la dynamique d'imbibition. En

revanche, pour l'eau nous avons une forte contradiction avec la loi de Washburn : aux temps courts une dynamique de plusieurs ordres de grandeur plus lente que la théorie, et aux temps longs une hauteur finale élevée.

Ensuite, les mesures par IRM nous ont permis d'étudier séparément les évolutions de la distribution d'eau liée et celle d'eau libre au cours de l'imbibition. Nous avons observé que l'eau liée diffuse plus vite que la montée capillaire de l'eau libre, et que l'avancée du front d'eau libre est imposée par la zone de saturation d'eau liée. Les déformations sont cohérentes avec les profils d'eau liée. Enfin nous avons proposé un modèle de diffusion qui nous permet de décrire la forme et le timing de l'avancée de l'eau liée.

Dans la dernière partie, nous avons pu constater avec les images µTRX deux formes d'interface eau-air selon l'humidité dans le bois. Les observations au microtomographe mettent en évidence l'effet de l'adsorption d'eau liée sur les conditions de mouillage. Nous avons finalement pu proposer un schéma physique basé sur tous les résultats obtenus pour décrire le mécanisme d'imbibition d'eau dans le bois.

Pour être sûr qu'on a bien compris le mécanisme, à l'issu de ce chapitre, il apparaît intéressant de confirmer ces interprétations physiques par des expériences avec un matériau modèle ayant les mêmes propriétés essentielles que le bois. L'étude de ces phénomènes avec un « bois artificiel » à base d'hydrogel fait l'objet du chapitre suivant.

3.6 Annexe : Modélisation de la diffusion d'eau liée

Dans cette annexe nous allons tentons de modéliser le transfert longitudinal d'eau liée dans le bois. Contrairement à un écoulement en masse résultant de la pression capillaire, la diffusion d'eau liée dans les parois cellulaires est due à des différences de concentration. Nous définissons n, le ratio entre la quantité d'eau liée et le nombre maximum de molécules d'eau qui peuvent être adsorbées. Le processus de diffusion 1D peut être décrit selon la seconde loi de Fick :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}(\mathrm{D}\frac{\partial n}{\partial x}) \tag{3.4}$$

où D est le coefficient de diffusion d'eau liée dans les parois, considéré constant pour l'instant.

Considérons un processus de diffusion entre deux plans, l'un situé initialement à $x = x' = 0\ cm$ et l'autre à $x = 10\ cm$. Nous pouvons définir les conditions aux limites de nos expériences : pour $t = 0$, on a $n(x = 0) = 1$ où se situe l'entrée d'eau, et $n(x = 10) = 0$. Par ailleurs, initialement pour tout $x > 0$, nous avons $n(x > 0) = 0$. Il s'agit donc de la diffusion dans un milieu semi-infini avec un bord non perméable (pas de diffusion à travers du bord gauche à $x = 0$) dont la concentration est fixée. Dans les travaux de CRANK [1975] (p.13), on trouve la solution numérique de l'équation.3.4 avec ces conditions aux limites. On constate que la distribution temporelle de concentration est qualitativement similaire aux profils d'eau liée hors de la zone saturée, c'est-à-dire d'abord une diminution rapide de la valeur de n suivie par un taux de diminution plus lent aux distances longues.

Cependant, un facteur critique n'est pas pris en compte dans ce modèle simplifié, dans lequel la position du bord où $n = 1$ est fixée à $x = 0\ cm$. En réalité, sur les profils

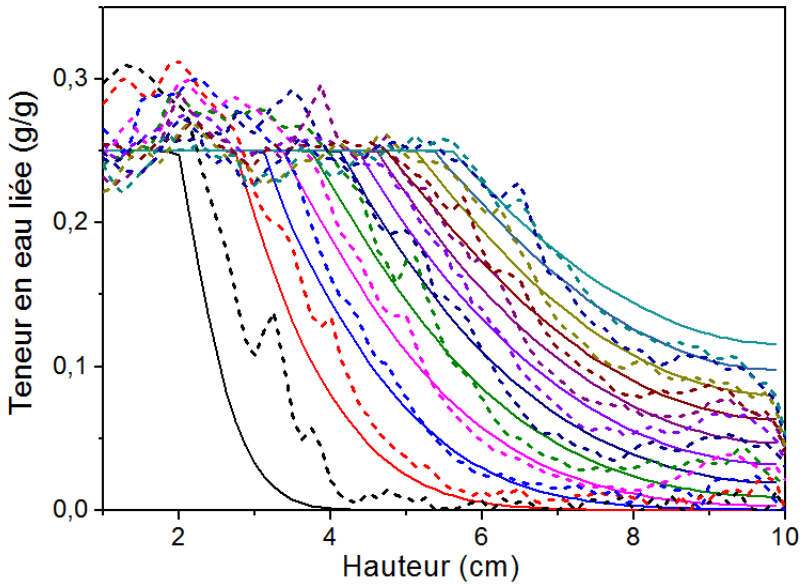


FIGURE 3.31 – Modélisation de la diffusion avec un front de saturation imposé (voir texte, représentée en lignes continues) comparée avec les profils IRM d'eau liée (lignes pointillées), avec un coefficient de diffusion apparent D = $5,8 \times 10^{-9}$ m^2/s. Le premier profil est montré à 3 h, puis toutes les 6h.

IRM nous observons une zone de saturation en eau liée qui avance (voir l'insert de la Fig.3.16), avec le même timing que celui de l'avancée du front d'eau libre). Autrement dit, au lieu d'une condition à la limite fixée à $x = 0\ cm$, nous avons un front de saturation dont la position x' varie au cours du temps.

De ce fait, on impose une diffusion à partir d'une zone de saturation avec un front qui se déplace à la vitesse déterminée par les observations par IRM. Les simulations numériques basées sur ce modèle ont été réalisées avec l'aide de Stéphane Rodts (Laboratoire Navier). Sur la Fig.3.31, nous comparons les résultats de simulation avec les profils d'eau liée mesurés. On constate que ce modèle de diffusion reproduit bien les tendances observées par IRM. Nous pouvons alors en déduire le coefficient de diffusion D = $5,8 \times 10^{-9}$ m^2/s. Cette valeur est finalement du même ordre de grandeur que celles données dans les travaux de [MANNES et collab., 2009; OLEK et collab., 2005; SIAU, 1995].

Ce modèle s'appuie cependant sur des hypothèses simplificatrices. Il suppose un milieu homogène et un coefficient de diffusion contant. Or, le coefficient de diffusion de l'eau liée n'est pas constant mais il varie avec l'humidité du bois. MANNES et collab. [2009]; OLEK et collab. [2005] ont par exemple proposé de représenter ces variations sous la forme : D = $D_0 e^{\alpha n}$, avec α un coefficient devant n. De plus, la comparaison présentée sur la Fig.3.31 reste approximative, car une certaine quantité d'eau liée n'est pas visible aux HR basses. Afin de prendre en compte cet effet, nous avons simplement considéré que le signal IRM est proportionnel à l'eau liée nouvellement adsorbée et nous imposons $n = 0$ comme condition à la limite dans la simulation. Le fit est appliqué sur l'ensemble des données d'IRM, sans éliminer le plateau dû à l'adsorption de vapeur dans la partie supé-

rieure. Néanmoins, cette approche nous permet quand même d'apprécier les caractéristiques principales du phénomène : la forme et le timing de l'avancement de l'eau liée.

3.7 Références

ALMEIDA, G., S. GAGNÉ et R. E. HERNÁNDEZ. 2007, «A NMR study of water distribution in hardwoods at several equilibrium moisture contents», *Wood Science and Technology*, vol. 41, nº 4, doi :10.1007/s00226-006-0116-3, p. 293–307, ISSN 00437719. 129, 137

BANKS, W. B. 1980, «The Effect of Cell Wall Swelling on the Permeability of Grand Fir Wood», *Wood Science and technologyechnology*, vol. 14, doi :10.1007/BF00350942, p. 49–62, ISSN 00437719. 125

BONNET, M. 2017, *Analyse multi-échelle du comportement hygromécanique du bois : Mise en évidence par relaxométrie du proton et mesures de champs volumiques de l' influence de l 'hétérogénéité au sein du cerne*, thèse de doctorat, Université Paris-Est. 127, 129, 132

BONNET, M., D. COURTIER-MURIAS, P. FAURE, S. RODTS et S. CARE. 2017, «NMR determination of sorption isotherms in earlywood and latewood of Douglas fir. Identification of bound water components related to their local environment», *Holzforschung*, vol. 0, nº 0, doi :10.1515/hf-2016-0152, ISSN 1437-434X. URL http://www.degruyter.com/view/j/hfsg.ahead-of-print/hf-2016-0152/hf-2016-0152.xml. 131

COMSTOCK, G. L. et W. A. CÔTÉ. 1968, «Factors affecting permeability and pit aspiration in coniferous sapwood», *Wood Science and Technology*, vol. 2, nº 4, doi :10.1007/BF00350274, p. 279–291, ISSN 00437719. 125

COX, J., P. J. MCDONALD et B. A. GARDINER. 2010, «A study of water exchange in wood by means of 2D NMR relaxation correlation and exchange», *Holzforschung*, vol. 64, nº 2, doi :10.1515/HF.2010.036, p. 259–266, ISSN 00183830. 131

CRANK, J. 1975, *The mathematics of diffusion*, Clarendon Press, Oxford. 158

DVINSKIKH, S. V., M. HENRIKSSON, A. L. MENDICINO, S. FORTINO et T. TORATTI. 2011, «NMR imaging study and multi-Fickian numerical simulation of moisture transfer in Norway spruce samples», *Engineering Structures*, vol. 33, nº 11, doi :10.1016/j.engstruct.2011.04.011, p. 3079–3086, ISSN 01410296. URL http://dx.doi.org/10.1016/j.engstruct.2011.04.011. 141

FRANDSEN, H. L., L. DAMKILDE et S. SVENSSON. 2007, «A revised multi-Fickian moisture transport model to describe non-Fickian effects in wood», *Holzforschung*, vol. 61, nº 5, doi :10.1515/HF.2007.085, p. 563–572, ISSN 00183830. 141

GEZICI-KOÇ, Ö., S. J. F. ERICH, H. P. HUININK, L. G. J. VAN DER VEN et O. C. G. ADAN. 2017, «Bound and free water distribution in wood during water uptake and drying as measured by 1D magnetic resonance imaging», *Cellulose*, vol. 24, doi :10.1007/s10570-016-1173-x, p. 535–553, ISSN 0969-0239. URL http://link.springer.com/10.1007/s10570-016-1173-x. 138

HAMEURY, S. et M. STERLEY. 2006, «Magnetic resonance imaging of moisture distribution in Pinus sylvestris L. exposed to daily indoor relative humidity fluctuations», *Wood Material Science and Engineering*, vol. 1, nº December 2013, doi :10.1080/17480270601150578, p. 116–126, ISSN 1748-0272. URL http://dx.doi.org/10.1080/17480270601150578. 141

LABBE, N., B. DE JESO, J. C. LARTIGUE, G. DAUDE, M. PETRAUD et M. RATIER. 2002, «Moisture content and extractive materials in maritime pine wood by low field H-1 NMR», *Holzforschung*, vol. 56, nº 1, doi :10.1515/HF.2002.005, p. 25–31, ISSN 0018-3830. 129

LIESE, W. et J. BAUCH. 1967, «On the closure of bordered pits in conifers», *Wood Science and Technology*, vol. 1, nº 1, doi :10.1007/BF00592252, p. 1–13, ISSN 00437719. 125

MANNES, D., W. SONDEREGGER, S. HERING, E. LEHMANN et P. NIEMZ. 2009, «Non-destructive determination and quantification of diffusion processes in wood by means of neutron imaging», *Holzforschung*, vol. 63, nº 5, doi :10.1515/HF.2009.100, p. 589–596, ISSN 00183830. 159

MCCULLY, M., M. CANNY, A. BAKER et C. MILLER. 2014, «Some properties of the walls of metaxylem vessels of maize roots, including tests of the wettability of their lumenal wall surfaces», *Annals of Botany*, vol. 113, nº 6, doi :10.1093/aob/mcu020, p. 977–989, ISSN 10958290. 155

OLEK, W., P. PERRÉ et J. WERES. 2005, «Inverse analysis of the transient bound water diffusion in wood», *Holzforschung*, vol. 59, nº 1, doi :10.1515/HF.2005.007, p. 38–45, ISSN 00183830. 159

SIAU, J. 1995, *Wood : influence of moisture on physical properties*, Virginia Polytechnic Institute and State University, Keene NY, USA. 159

Chapitre 4

Matériau modèle - Hydrogels

Sommaire

4.1 Imbibition capillaire dans des hydrogels saturés 164
4.2 Dynamique d'interface dans des hydrogels déshydratés 166
4.2.1 Généralité 166
4.2.2 Régime transitoire 168
4.2.3 Nature du deuxième régime 169
4.2.4 Formes d'interface 170
4.2.5 Front de déformation 172
4.2.6 Discussion 172
4.3 Analyse des résultats 175
4.4 Conclusion 179
4.5 Références 180

Dans le chapitre précédent, nous avons obtenu une série de résultats sur le phénomène d'imbibition d'eau dans le bois. Nous avons vu que l'adsorption et la diffusion d'eau liée jouent un rôle important qui contrôle la dynamique d'imbibition d'eau libre.

Notre but va être maintenant d'étudier les mécanismes mis en jeu avec un matériau modèle à base d'hydrogel. À l'aide des hydrogels, nous réalisons une structure simple mais qui représente les caractéristiques essentielles d'un bois de feuillu : la matrice d'hydrogel ayant la capacité d'absorber de l'eau qui simule les parois cellulaires; un canal dans lequel l'eau peut monter par capillarité, et qui est analogue à un vaisseau. Ces « bois artificiels », avec des bulles confinées dedans, ont été déjà utilisés pour étudier les cavitations et le phénomène d'embolie dans l'arbre [VINCENT et collab., 2012; WHEELER et STROOCK, 2008]. Dans cette étude, nous réalisons des expériences d'imbibition avec ce « bois artificiel » qui nous permettront d'avoir une meilleure observation du phénomène dans les conditions contrôlées.

4.1 Imbibition capillaire dans des hydrogels saturés

Dans ce chapitre, nous abordons d'abord l'imbibition capillaire dans des hydrogels saturés. Les hydrogels ayant un canal au milieu sont fabriqués selon le protocole présenté dans la section 2.5. Après la fabrication, les échantillons d'hydrogels sont immédiatement plongés dans l'eau déminéralisée pendant au moins une semaine jusqu'à ce qu'ils atteignent leur masse maximale. Avant l'expérience, l'eau liquide restant dans le canal est soigneusement retirée par un tissu absorbant. L'expérience d'imbibition commence lorsque un des extrémités de l'échantillon est mis en contact avec l'eau grâce au dispositif décrit dans la section 2.5. Puis l'évolution de la hauteur de l'interface eau-air dans le canal en fonction du temps est enregistrée par une caméra à 15 fps (voir Section.2.5).

Étant parfaitement transparents, les hydrogels nous permettent directement d'observer la position et la forme de l'interface eau-air dans les capillaires. De ce fait, il faut noter que les hydrogels fabriqués dans des seringues ont une forme cylindrique. L'échantillon est placé entre la source qui émet de la lumière parallèle et la caméra (voir Fig.2.43 dans la section.2.5). Nous obtenons alors la projection d'un cylindre sur des images en 2D. À cause de la géométrie de l'échantillon, l'effet optique implique que la distance radiale dans l'hydrogel apparait plus grande que la valeur réelle. Au contraire, la distance le long de l'axe de l'échantillon, i.e., la distance parcourue par l'interface dans le canal, peut être mesurée correctement. En prenant cela en compte, nous pouvons maintenant regarder les résultats obtenus.

La Fig.4.1 montre les positions successives de l'interface eau-air dans un capillaire de diamètre de 500 μm dans un hydrogel saturé. En raison des densités similaires (un hydrogel saturé contenant 87% d'eau), nous ne pouvons pas distinguer les phases d'eau et l'hydrogel sur les images. Cependant, l'interface eau-air est bien visible sur les images.

Sur la Fig.4.1 nous pouvons observer un comportement typique de « Washburn » : l'interface ayant une forme de ménisque avance sur la hauteur à une vitesse décroissante au cours du temps. L'imbibition dans le canal de diamètre de 500 μm est presque terminée au bout de 1 s. Une fois stabilisée à la hauteur maximale, l'angle de contact apparent peut

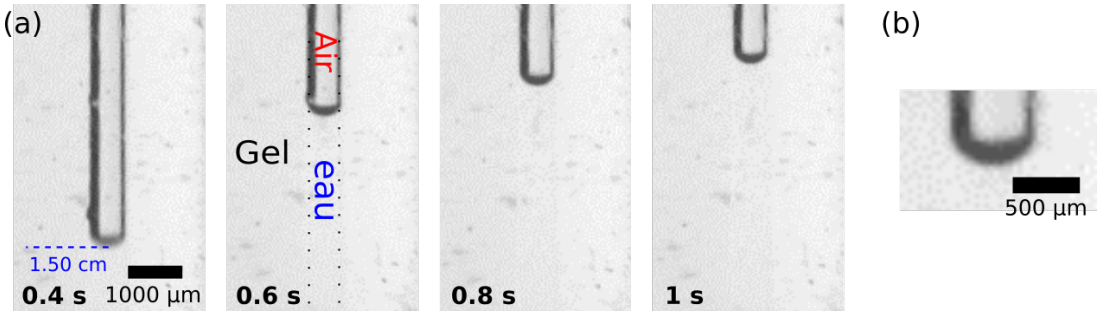


FIGURE 4.1 – **(a)** Série d'images montrant la montée capillaire dans un canal de diamètre de 500 µm dans un hydrogel saturé au cours de l'imbibition. La ligne pointillée bleue montre la distance entre l'interface et le niveau d'eau dans le récipient sur la première image montrée à 0,4 s. **(b)** Forme de l'interface eau-air dans l'hydrogel saturé.

être mesuré à partir de la géométrie du système. Nous obtenons un angle de contact apparent d'environ 15° sur la Fig.4.1.b. Comme l'interface est légèrement déformée et élargie dans la direction radiale par l'effet optique, la vraie valeur de l'angle de contact est donc inférieure à 15°.

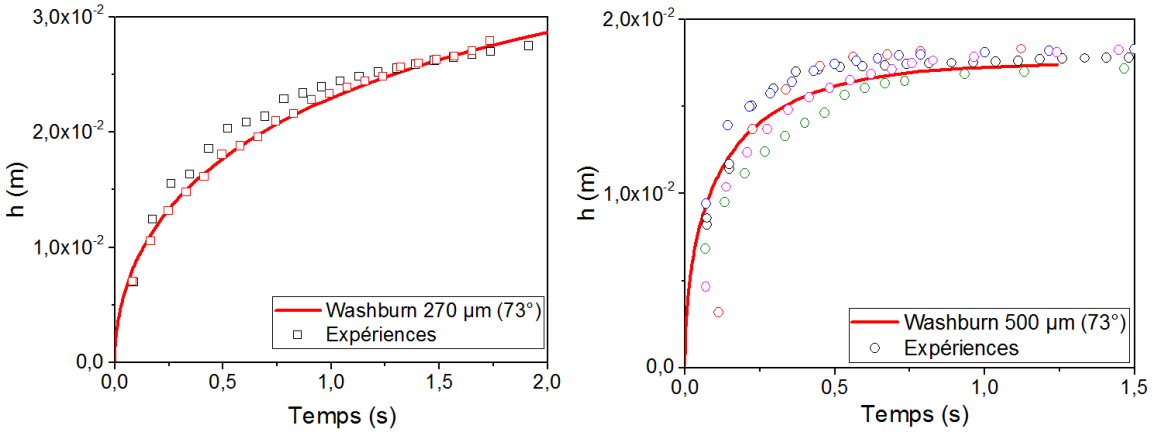


FIGURE 4.2 – L'évolution de position de l'interface eau-air dans les hydrogels saturés au cours du temps. **À gauche** : ϕ = 270 µm. **À droite** : ϕ = 500 µm. Lignes rouges, prédiction du modèle de Washburn avec un angle de contact de 73°. Les symboles de différentes couleurs représentent les données de différents essais.

La Fig.4.2 montre l'évolution de la position de l'interface dans deux capillaires de différents diamètres : 270 µm et 500 µm dans des hydrogels saturés. Nous pouvons ainsi analyser les résultats de façon quantitative avec le modèle développé au chapitre 3 (voir Section 3.1.1.1). Rappelons que dans le premier régime où la gravité est négligeable, nous avons $h = \sqrt{Kt}$ avec $K = \gamma R cos\theta / 2\mu$; puis dans le second régime où la gravité domine, le ménisque atteint la hauteur maximale $h_{max} = 2\gamma cos\theta / \rho g R^2$.

La Fig.4.2 montre les tendances en accord avec les prédictions du modèle : plus le diamètre du capillaire est grand, plus la montée est rapide et moins la hauteur finale est élevée. Avec la valeur du plateau nous pouvons en déduire un angle de contact de 73°, une

valeur qui, donne une valeur de K théorique cohérente avec les données expérimentales (voir Fig.4.2).

Nous remarquons néanmoins une différence significative entre l'angle de contact observé à partir des images ($\leqslant$ 15°) et celui obtenu à partir de la dynamique (73°). Nous obtenons ainsi un ratio de $K_{exp}/K_{Washburn} \approx 0,3$.

L'observation sur un écoulement capillaire $h \propto \sqrt{t}$ mais avec un rapport entre $0,3 \sim 0,4$ du coefficient K théorique selon la loi de Washburn a été en fait déjà constatée et a fait l'objet de l'étude de [ANDERSSON et collab., 2017]. Le protocole de fabrication des échantillons dans cette thèse est inspiré de ces travaux. Dans leur étude, ils ont examiné la dynamique de remontée capillaire dans deux types d'hydrogels, avec diamètre de capillaire variant entre 180 à 630 μm. Après avoir éliminé différentes possibilités qui pourraient engendrer cet écart (des effets d'inertie, l'utilisation de l'angle de contact statique au lieu de dynamique, l'écoulement osmotique éventuel entre le canal et l'hydrogel), ils ont finalement suggéré que la montée capillaire dans une matière molle peut être ralentie par la dissipation de l'énergie viscoélastique dans la matrice. La déformation locale à la ligne de contact des trois phases eau-air-gel due à la force capillaire peut être estimée avec la relation $h \approx \gamma sin\theta/Y$, où Y est le module d'Young du gel. Selon eux, pour le gel d'alginate qu'ils étudient, la déformation verticale de la paroi du gel à la ligne de contact est de l'ordre de 1 μm, une valeur trop faible pour être visible sur leurs images.

Ici nous observons le même phénomène avec des hydrogels différents. Nous n'allons pas d'explorer l'effet de la déformation locale sur la dynamique d'imbibition dans des hydrogels saturés, mais nous allons nous focaliser par la suite sur les variations de dynamique d'imbibition entre les hydrogels saturés et déshydratés.

4.2 Dynamique d'interface dans des hydrogels déshydratés

Dans les hydrogels saturés, la quantité d'eau absorbée dans le réseau réticulé de polymères atteint la valeur maximale. Nous n'observons pas de déformation ni de diffusion dans les hydrogels. Nous nous intéressons donc maintenant à un cas plus proche du matériau bois : des hydrogels stabilisés à 55% et 85% HR dont la teneur en eau est ainsi diminuée à 8 wt% et 25 wt% respectivement. Notons que la teneur maximale en eau d'un hydrogel (saturé) est de 87 wt%.

4.2.1 Généralité

De façon générale, l'imbibition dans un hydrogel non-saturé est un phénomène beaucoup plus complexe que l'imbibition dans un hydrogel saturé. Nous observons un mouvement spontané de l'interface eau-air (voir Fig.4.3) : tout d'abord, pendant les premières minutes après le contact avec de l'eau, nous n'observons pas d'interface dans le capillaire mais seulement les déformations de la partie inférieure du gel. Les premières images de l'interface eau-air sont enregistrées seulement après une dizaine de minutes (voir les deux images les plus à gauche de la Fig.4.3). Le mouvement de l'interface est extrêmement lent

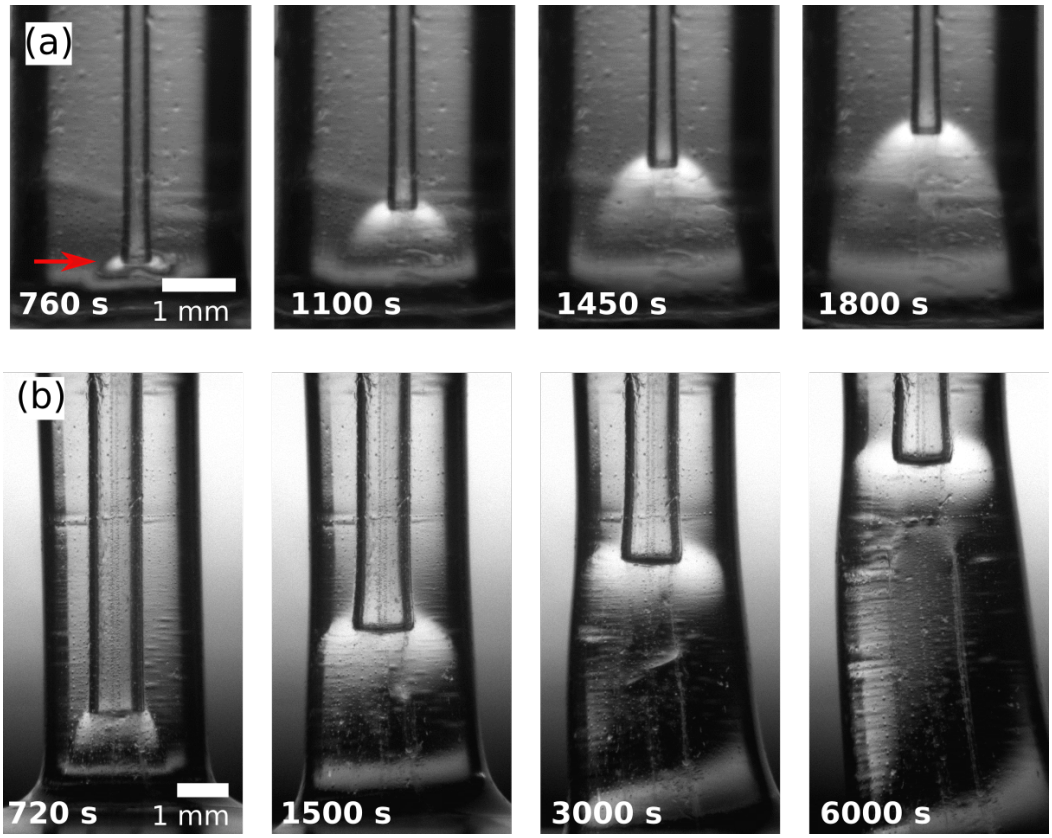


FIGURE 4.3 – Séries d'images montrant le déplacement de l'interface eau-air dans les hydrogels stabilisés à 55 % HR. **(a)** Capillaire de diamètre de 263 μm. La flèche rouge indique le front de déformation dans la matrice d'hydrogel due à la diffusion d'eau. **(b)** Capillaire de diamètre de 716 μm.

(de l'ordre du $\mu m/s$) par rapport à l'imbibition capillaire dans les hydrogels saturés qui se produit globalement en 1 ~ 2 s (voir Fig.4.1).

Ensuite, comme les échantillons étudiés dans cette partie sont déshydratés, nous nous attendons à observer les gonflements de la matrice d'hydrogel avec l'ascension de l'interface eau-air. Cependant, il est intéressant de noter sur la Fig.4.3 que les gonflements locaux dans la matrice forment un front arrondi qui avance avec, et reste devant l'interface eau-air. Le front de déformation dans la matrice est visible sur les images grâce au reflet de lumière sur la frontière entre les zones de gel gonflé et non-gonflé.

Enfin, nous pouvons remarquer que par rapport au ménisque observé dans les hydrogels saturés (voir Fig.4.1), la forme d'interface eau-air dans les hydrogels déshydratés est beaucoup moins courbée et semble être plane.

4.2.2 Régime transitoire

Avant de procéder à l'analyse quantitative de la dynamique de l'interface dans les hydrogels déshydratés, regardons d'abord plus en détail ce qui se passe lors du premier contact de l'échantillon avec de l'eau liquide.

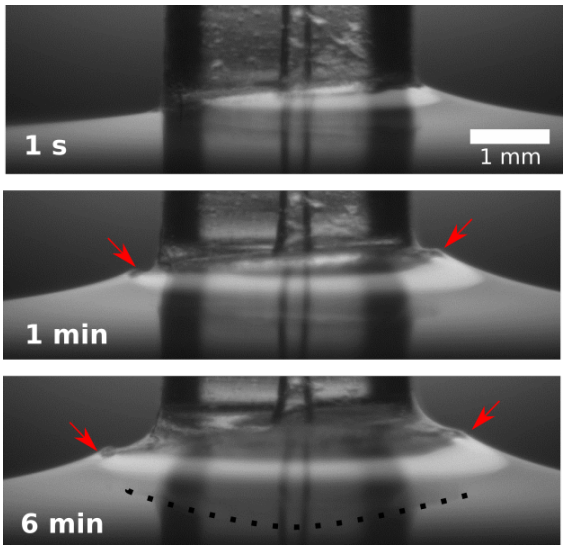


FIGURE 4.4 – Images successives montrant les déformations de la partie inférieure d'un échantillon (263 μm, à 55% HR) pendant les premières minutes après le contact avec de l'eau. Les flèches rouges indiquent la déformation de la paroi extérieure de l'hydrogel qui est en contact avec la surface d'eau. Les points noirs dessinent la forme de la surface inférieure de l'échantillon qui est initialement droite sous la surface d'eau.

Lorsque le bas d'un hydrogel déshydraté est mis en contact avec de l'eau, il se déforme quasi immédiatement. Contrairement aux échantillons de bois, la déformation de la matrice d'hydrogel est isotrope. Nous trouvons alors une période initiale où on observe le gonflement radial de la paroi extérieure de l'hydrogel, ainsi que la déformation

dans la direction longitudinale qui fait plonger la surface inférieure de l'échantillon (l'entrée du capillaire) sous la surface d'eau (voir Fig.4.4). Nous pouvons alors voir qu'il s'agit d'un régime transitoire où les conditions sont très sensibles et mal contrôlées : une importante quantité d'eau est rapidement absorbée dans la partie d'hydrogel proche de la surface d'eau, ce qui change radicalement la distribution d'eau initiale dans la matrice d'hydrogel. De plus, le gonflement rapide en contact avec de l'eau liquide induit des déformations locales très hétérogènes : une faible inclinaison de la surface inférieure de l'échantillon par rapport à la surface d'eau, un petit défaut sur la paroi extérieure de l'hydrogel, etc., pourraient induire en seulement quelques secondes une asymétrie des déformations. Dans cette période initiale (~ 10 mins) et pour $h \leqslant 1\ mm$ (h est définie comme la distance verticale entre l'interface dans le canal et la surface d'eau dans le récipient), nous ignorons à vrai dire la position et le timing du mouvement de l'interface eau-air, même si l'instant du premier contact entre l'échantillon et la surface d'eau est bien défini.

À partir d'une certaine hauteur au-dessus de la surface d'eau où la paroi d'hydrogel est moins voire non déformée, l'interface peut être enfin visible, comme montrée par les images sur la Fig.4.3. Comme discuté ci-dessus, nous avons vu que c'est une période très sensible aux conditions initiales qui ne sont pas parfaitement contrôlées. En effet, nous observons que, (i) la durée de cette période varie d'un échantillon à l'autre, et (ii) la vitesse de l'interface est rapide et variable entre les échantillons avant d'entrer dans un régime stable où on observe globalement $\triangle h \propto \sqrt{t}$.

4.2.3 Nature du deuxième régime

Après avoir discuté de ce qui se passe dans le premier régime où nous avons une mauvaise répétabilité, nous pouvons maintenant regarder le comportement de l'interface dans le second régime. La conséquence du régime initial est que le mouvement des interfaces semble démarrer sur une certaine hauteur $\triangle h_0$ qui varie d'une expérience à l'autre. Afin d'éliminer cet effet et discuter des résultats dans des conditions contrôlées, les courbes d'imbibition montrées par la suite sont déplacées verticalement d'une valeur $\triangle h_0$ ($|\triangle h_0| < 1\ mm$), de façon à se superposer sur un point initial.

Pour étudier de manière quantitative la dynamique des interfaces, nous avons réalisé plusieurs essais d'imbibition en faisant varier le diamètre du capillaire et la teneur en eau initiale dans les hydrogels. Les résultats sont présentés sur la Fig.4.5 sur laquelle on peut remarquer que toutes les courbes se superposent dans le second régime en formant une courbe unique. Cela signifie qu'en dépit du démarrage "aléatoire" sur $\triangle h_0$, dans le second régime pendant une courte durée $\triangle t$, le déplacement $\triangle l$ est similaire pour tous les échantillons. La modification des courbes par une translation est donc justifiée et on en conclut par conséquent l'indépendance des deux paramètres étudiés sur la dynamique de l'interface : diamètre du canal et teneur en eau (8-25 wt%), dans nos gammes d'étude.

Après avoir justifié que nous avons bien dans le second régime une montée en racine carrée du temps, nous pouvons maintenant analyser les résultats en nous basant sur le modèle de Washburn.

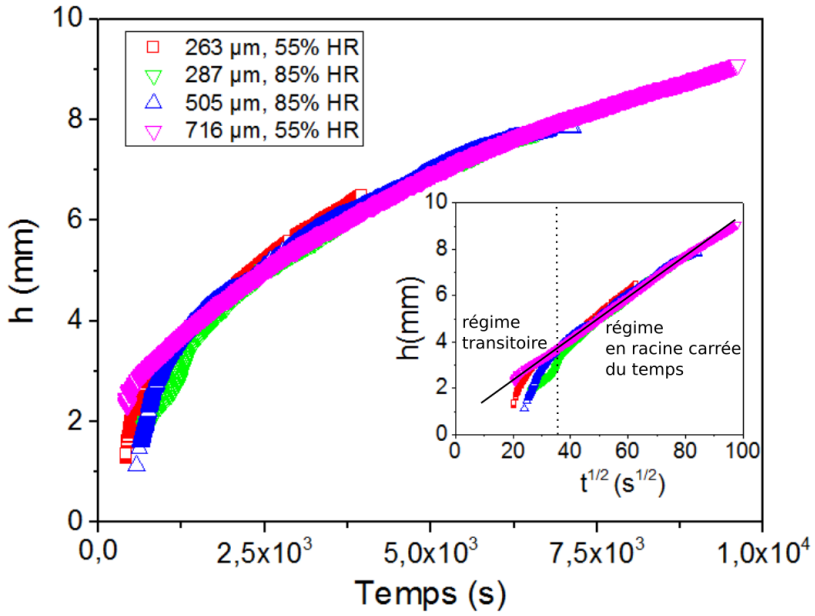


FIGURE 4.5 – Dynamique des interfaces en fonction du temps réel dans différents capillaires stabilisés à différentes humidités relatives. En insert, l'évolution de la position de l'interface h en fonction du $\sqrt{t}$. La ligne pointillée verticale indique la séparation des deux régimes. La ligne noire continue montre la linéarité de $h \propto \sqrt{t}$ dans le second régime.

Comme dans le cas du bois, la Fig.4.5 nous permet d'observer de nouveau une forte contradiction avec le modèle de Washburn : une montée très lente mais qui finalement parvient à une hauteur élevée. Une analyse simple nous permet de constater encore cette incohérence : avec une hauteur finale de montée de l'ordre de 1 cm, on peut estimer une valeur de l'angle de contact de l'ordre de 75° dans le canal de diamètre 716 µm (ou 85° pour le diamètre le plus petit de 263 µm). Avec une telle valeur de l'angle de contact, nous pouvons en déduire le coefficient $K_\theta = 3 \times 10^{-3}$ m^2/s pour 2R = 716 µm. Cependant le modèle calé sur l'observation de la Fig.4.5 donne $K_{exp} = 1 \times 10^{-8}$ m^2/s, soit 1/300000 de K_θ ! Un tel écart semble être trop élevé par rapport à ce que nous obtenons avec les hydrogels saturés (0,3) pour être expliqué par la dissipation de l'énergie viscoéclastique de la paroi molle.

4.2.4 Formes d'interface

Il existe une différence notable de la forme de l'interface entre les gels saturés (voir Fig.4.1) et les gels déshydratés (voir Fig.4.3). Il semble que l'angle de contact dépende du degré d'hydratation dans l'hydrogel : plus l'hydrogel est déshydraté, plus l'angle de contact entre l'eau et le gel est grand. Il semble ainsi raisonnable d'en déduire que, s'il y existe un gradient de concentration d'eau le long de la paroi résultant de la diffusion dans la matrice d'hydrogel, on pourrait alors s'attendre à observer différentes conditions de mouillage sur différents endroits le long du canal.

Afin de vérifier cette idée, avec une expérience avec un hydrogel déshydraté, nous

stoppons volontairement l'imbibition après un certain temps de montée en coupant le contact de l'échantillon avec la source d'eau. Puis nous faisons reculer légèrement l'interface eau-air dans le canal en retirant une petite quantité d'eau par l'entrée du canal. Nous remarquons que l'interface change tout de suite de forme (voir Fig.4.6) en reculant seulement d'une centaine de µm.

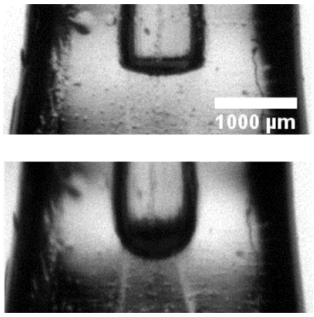


FIGURE 4.6 – Formes d'une même interface dans un capillaire de diamètre 716 μm (55% HR) au cours de l'imbibition spontanée (**en haut**) et après un léger recul (**en bas**).

Pour continuer dans ce genre d'observations, nous nous intéressons maintenant à ce qui va se passer si on force l'interface à avancer dans un canal ayant une paroi sèche.

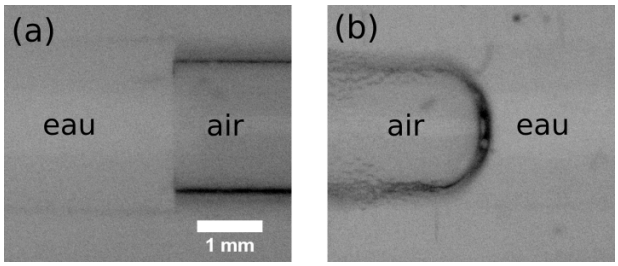


FIGURE 4.7 – **(a)** : Injection d'eau liquide dans un canal de diamètre de 2 mm par une seringue (échantillon préconditionné à 55% HR). **(b)** : Injection d'air dans le même canal rempli d'eau. La direction du fluide injecté est de gauche à droite.

L'expérience d'injection est réalisée dans un canal de diamètre de 2 mm pour faciliter l'injection avec une seringue. L'échantillon préconditionné à 55% HR est mis à plat sur une lamelle de verre. L'injection s'effectue de gauche à droite et elle est observée par un microscope binoculaire. Les résultats sont montrés sur la Fig.4.7.

En forçant l'interface à avancer à une vitesse $\sim 1\ mm/s$, soit 10^3 plus élevée que la vitesse observée en imbibition spontanée ($\sim \mu m/s$), nous pouvons considérer que l'eau absorbée dans la paroi depuis le canal n'a pas le temps de diffuser au-delà de l'interface dans la direction d'injection. L'interface découvre à chaque instant t une paroi d'hydrogel de même teneur en eau initiale. La Fig.4.7.a nous montre dans ce cas une interface parfaitement plane, indiquant un angle de contact dynamique très proche de 90°. En revanche, lorsque nous injectons de l'air dans la même direction quelques secondes après, nous observons alors un ménisque classique avec un angle de contact $\sim 15°$ (voir Fig.4.7.b), une

valeur similaire à l'observation sur la Fig.4.1 avec les gels saturés.

4.2.5 Front de déformation

Nous nous intéressons maintenant à la forme du front de déformation comme montré par la Fig.4.3. Dans la matrice d'hydrogel, il semble qu'à partir de l'eau dans le canal, il y a non seulement une diffusion dans la direction longitudinale mais également une diffusion radiale qui est perpendiculaire à l'axe du canal, ce qui forment un front arrondi qui avance avec l'interface eau-air.

On néglige pour l'instant le mouvement longitudinal, et on considère que l'eau diffuse depuis le canal en contact avec l'eau liquide dans l'hydrogel. Mathématiquement le problème se réduit en un problème de diffusion dans un cylindre creux, où il y a un flux de diffusion selon l'axe radial r, depuis la paroi intérieure $r = a$ vers la paroi extérieure $r = b$. Dans le système de coordonnées cylindriques, le volume infinitésimal s'écrit comme :

$$dV = r dr d\theta dz \tag{4.1}$$

et le débit du flux à travers ce volume est donnée par :

$$Q = -D\frac{\partial C}{\partial x} \cdot dV = -D\frac{\partial C}{\partial x} r dr d\theta dz \tag{4.2}$$

Cependant, avec nos mesures on n'est pas capable de connaitre la distribution 3D de concentration $C(r, \theta, z, t)$ dans la géométrie cylindrique. Sur les images ce que nous observons est en réalité la projection d'un cylindre sur le plan rz. À partir des images, pour une hauteur donnée à certaine z, on peut tracer la distance radiale entre le front de déformation et la paroi intérieure $\triangle r$ en fonction du temps. Le résultat est présenté sur la Fig.4.8.

À première vue, il semble que nous avons une relation linéaire entre $\triangle r$ et $\sqrt{t}$, qui suggère qu'il s'agit d'un processus de diffusion. Si on considère une diffusion unidimensionnelle on peut même en déduire un coefficient de diffusion qui vaut une valeur de l'ordre de grandeur 10^{-10} m^2/s. Cependant, il s'agit bien une diffusion dans l'espace en 3D. Prenons l'Eq.4.1 nous pouvons voir que dans le système de coordonnées cylindriques, dV n'est pas constant mais augmente avec r. Si pour une unité de temps le flux Q à travers le volume dV est constant, avec l'Eq.4.2 on peut voir que lorsque r augmente, D en apparence diminue. C'est en effet ce que nous observons sur la Fig.4.8 où la pente semble diminuer avec $\triangle r$.

4.2.6 Discussion

À partir de ces observations, on peut enfin en déduire ce qui se passe lors de l'imbibition dans les hydrogels déshydratés : tout d'abord, depuis le premier contact entre l'eau et le capillaire, l'ascension de l'interface dans le capillaire est momentanément "arrêtée" puisqu'il n'y a pas de force motrice : la dépression capillaire est nulle en raison de l'angle de contact ~ 90°. Cependant, l'eau peut diffuser dans la matrice d'hydrogel. La teneur en eau dans la zone devant l'interface augmente au fur et à mesure grâce à la diffusion.

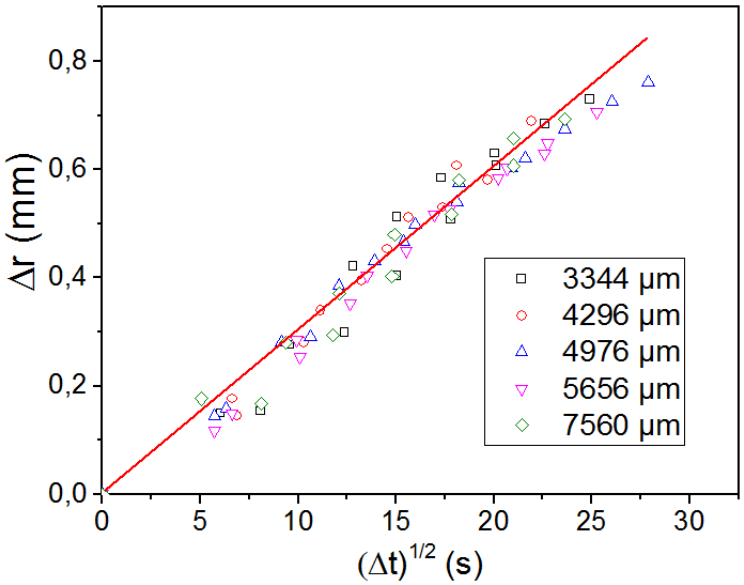


FIGURE 4.8 – Évolution de la distance radiale du front de déformation en fonction de la racine carrée du temps, à différentes hauteurs données (symboles). La ligne droite est un fit linéaire avec une pente $2,9 \times 10^{-5}\ m/s^{1/2}$.

Puis lorsqu'elle atteint une valeur critique, la zone de la paroi se situant devant l'interface devient hydrophile, ce qui permet ainsi de modifier l'angle de contact. L'ascension de l'interface est "déclenchée" sous l'action de la nouvelle force capillaire mais s'arrête lorsqu'elle arrive sur une nouvelle zone sèche. Cela nous permet de comprendre le "moteur" du déplacement de la colonne d'eau dans le capillaire. Malgré un angle de contact apparent semblant trop faible pour compenser la gravité, l'interface ne peut pas avancer dans une zone hydrophobe, ni retomber non plus dans la zone saturée qui devient hydrophile. Par conséquent, on observe un processus spontané dont la dynamique est contrôlée par la diffusion dans la matrice d'hydrogel, et la hauteur finale déterminée par l'angle de contact avec l'hydrogel saturé.

Le rôle de l'hydratation des polymères sur le mouillage a été déjà étudié par plusieurs auteurs dans la littérature. MONTEUX et collab. [2009] ont observé un mauvais mouillage en déposant une goutte d'eau sur une couche sèche de polymère hydrophile. Selon eux, bien que les polymères hydrophiles disposent de sites ayant une bonne affinité avec l'eau, en état sec c'est leur squelette hydrophobe en -CH exposé à la surface, ce qui modifie les conditions de mouillage de la surface. Puis TAY et collab. [2010] et TAY et collab. [2011] ont montré que, la présence d'une goutte de solvant volatil, par exemple l'eau, déposée sur une fine couche de polymère, modifie le degré d'hydratation de la couche devant la ligne de contact. En forçant une goutte d'eau avancer avec une vitesse U sur une couche de polymère d'épaisseur e, ils ont constaté que, les conditions de mouillage sont différentes selon le produit de eU. Ils ont finalement conclut que le phénomène est d'origine de l'évaporation d'eau dans la phase d'air puis de la condensation dans la couche de polymère. Ils ont observé trois régimes qui dépendent de la valeur de e et U : pour une faible vitesse

d'avancée de la ligne de contact et pour une fine couche, la couche absorbe une fraction d'eau depuis la vapeur qui s'équilibre rapidement à travers toute l'épaisseur, la couche apparait ainsi hydrophile et on a dans ce cas un petit angle de contact ; alors que ce n'est pas le cas si l'épaisseur est suffisamment épaisse. Pour les vitesses élevées, indépendant de l'épaisseur de la couche, la couche n'a pas assez de temps pour absorber significativement d'eau dans la phase d'air, l'angle de contact dynamique observé est alors plus grand.

Nos observations présentent une analogue avec celles-ci : les conditions de mouillage dépendent du degré d'hydratation (ou teneur en eau) dans la matrice, et elles semblent être modifiées par les transferts d'eau au-delà de la ligne de contact. Cependant, la modification du mouillage est expliquée par le mécanisme d'évaporation/condensation au lieu de l'absorption directe de la goutte par les auteurs ci-dessus. De plus, nous sommes en réalité dans des échelles différentes : dans les travaux mentionnés ci-dessus, la vitesse imposée est de l'ordre de $10^{-4} \sim 10^{-2}\ m/s$, beaucoup trop élevée que la notre à $10^{-6}\ m/s$, et l'épaisseur est nanométrique ($1 \sim 1000\ nm$) alors dans notre cas la paroi d'hydrogel est de l'ordre de mm.

Dans nos gammes d'études, nous n'avons pas observé de différence entre un échantillon initialement saturé à 55% HR et un à 85% HR. Nous observons un changement abrupt de l'angle de contact, d'environ 90° à basse teneur en eau (8 wt% à 55% HR ou 25 wt% à 85% HR) à 15° à saturation (87 wt%). Cela suggère que le changement de condition de mouillage a lieu à des teneur en eau très élevées (entre 25 à 87 wt%). De plus, le microcanal est entouré par une paroi d'hydrogel d'épaisseur d'environ 2 mm qui peut être considérée comme un milieu semi-infini. Dans de telles conditions, nous ne pouvons pas espérer qu'un équilibre soit immédiatement établi entre l'humidité dans l'atmosphère et l'hydrogel. En conséquence, les transferts d'eau via évaporation/condensation ne semblent pas pouvoir être suffisamment efficaces pour augmenter la teneur en eau dans la paroi d'hydrogel au-delà de l'interface eau-air.

Faisons quelques calculs simples pour étudier plus précisement cette question. A l'air ambiant (25°C à la pression atmosphérique), un hydrogel déshydraté contient initialement une fraction d'eau massique Φ_0 ($\Phi_0 \ll \Phi_{sat}$). L'eau dans le gel a un potentiel chimique μ_{eau}^{gel}. On note ainsi les potentiels chimiques pour l'eau en état liquide et pour l'eau dans l'air respectivement μ_{eau}^{liq} et μ_{eau}^{air}. À 100 %HR, l'eau liquide est en équilibre avec l'eau dans l'air, nous avons donc $\mu_{eau}^{liq} = \mu_{eau}^{air} = \mu_{eau}^{0}$, où μ_{eau}^{0} est le potentiel chimique de référence de l'eau. Lorsque l'hydrogel est en contact avec l'eau, le gradient de potentiel chimique à l'interface eau-gel induit un flux massique d'eau $\vec{M}$ (en $kg/(m^2.s)$) :

$$\begin{aligned} \vec{M} &= -\kappa \times \frac{\nabla\mu}{v_m} \times C_{liq,air} \\ \nabla\mu &= \mu_{eau}^{gel} - \mu_{eau}^{liq,air} \end{aligned} \tag{4.3}$$

où κ est un facteur de perméabilité ($m^2/(Pa.s)$) comme dans le milieu poreux, v_m le volume moléculaire d'eau, $C_{liq,air}$ la concentration d'eau dans l'air ou en liquide. À l'air ambiant on a $C_{air} = 25\ g/m^3$ et $C_{liq} = \rho_{eau} = 10^3\ kg/m^3$

Avec l'Eq.4.3 on peut voir que l'hydrogel déshydraté soit exposé à la vapeur d'eau saturante ou à l'eau liquide, comme on a $\mu_{eau}^{liq} = \mu_{eau}^{air}$, on obtient le même "moteur" $\nabla\mu$ pour le flux dans les deux cas. Le flux massique est ainsi directement proportionnel à la concentration d'eau : si l'hydrogel est mis en contact avec de l'eau pure, la masse d'eau entre dans l'hydrogel est $C_{liq}/C_{air} = 4 \times 10^4$ fois plus élevée que la quantité induite par la vapeur. On peut donc en déduire que pour augmenter rapidement la teneur en eau dans l'hydrogel à la saturation, l'absorption via l'eau liquide est un moyen beaucoup plus efficace.

Il faut noter que nous ignorons pour l'instant la cinétique d'absorption dans l'hydrogel à différentes humidités. Mais l'équation 4.3 nous permet d'avoir une idée de la différence de la dynamique de l'absorption entre les deux phases. Pour vérifier l'hypothèse que l'effet d'évaporation/condensation est négligeable dans notre cas, avant de commencer une expérience d'imbibition, un échantillon (conditionné à 55% HR) est d'abord suspendu juste au-dessus mais sans contact avec la surface d'eau pendant 30 minutes. Pendant cette durée, les molécules d'eau évaporées de la surface d'eau ont suffisamment le temps de diffuser dans l'air sur toute la longueur du capillaire ($\sqrt{D_{air}t} \sim \sqrt{10^{-5} \times 1800} \approx 13\ cm \gg 1\ cm$). Cependant, nous n'observons ni gonflement visible de l'échantillon, ni différence de dynamique de l'interface par rapport aux essais d'imbibition standards. Le front de déformation montré sur la Fig.4.3 n'est observé que lors du contact de l'hydrogel avec l'eau pure. On peut donc en conclure que l'évaporation/condensation joue un rôle négligeable dans notre cas, et les transferts d'eau au-delà de l'interface eau-air proviennent essentiellement d'abord de l'absorption depuis la phase liquide d'eau puis de la diffusion au sein de l'hydrogel.

4.3 Analyse des résultats

Nous venons de voir que le phénomène observé lors de l'imbibition d'eau dans du bois est reproduit avec un « bois artificiel » à base d'hydrogel. Peut-on aller plus loin dans la compréhension du mécanisme mis en jeu ?

Revenons maintenant à la dynamique de montée de l'interface. Même si l'interface dans le capillaire présente une forme apparemment plane, il est difficile d'imaginer que l'angle de contact entre l'eau et l'hydrogel tombe sur la valeur exacte de 90°. Il est alors plus réaliste de supposer un angle de contact légèrement inférieur à 90°. À la ligne de contact, nous avons non seulement les transferts d'eau (i) par évaporation/condensation dans la vapeur et (ii) par absorption/diffusion via l'eau liquide, mais aussi (iii) la montée capillaire, comme montré par le schéma proposé sur la Fig.4.5.

On vient de voir que (i) peut être considéré comme négligeable. On peut donc suggérer qu'autour de la ligne de contact, le film d'eau subit une compétition entre (ii) et (iii) : il tend à la fois à avancer le long de la paroi par l'effet capillaire (pour toutes les valeurs d'angle de contact < 90°) et à être absorbé dans l'hydrogel. Nos observations montrent que les déplacements de l'interface dans le capillaire et du front de déformation dans le gel sont tous continus dans le temps. Ceci suggère que l'évolution des conditions aux li-

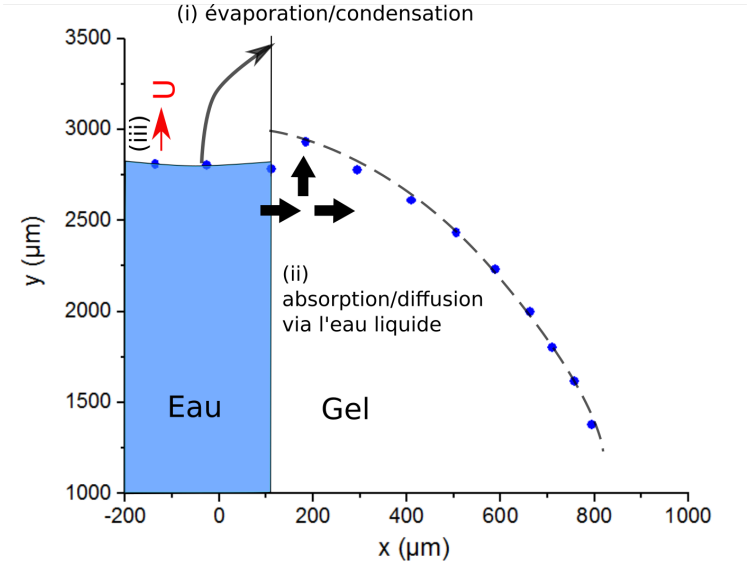


FIGURE 4.9 – Schéma montrant les transferts d'eau autour de la ligne de contact : (i) évaporation et condensation via la vapeur d'eau; (ii) absorption et diffusion via l'eau liquide; (iii) montée de l'interface induite par la force capillaire. Les points bleus décrivent l'interface et le front de déformation dans l'hydrogel sur une image réelle acquise, avec les axes de coordonnées x et y correspondants.

mites, résultant de la compétition entre (ii) et (iii), est également continue.

On peut alors définir une vitesse U associée à un certain angle de contact θ. Pendant un temps Δt le film d'eau effectue un déplacement très petit par rapport à la hauteur h. La vitesse U peut être considère constante pendant cette période. La surface mouillée par le film est $\Delta S = 2\pi RU\Delta t$, associée à un volume du film $U\Delta t \cdot tan\theta/2$. En même temps, lorsque le film rencontre une paroi sèche, un flux d'absorption est immédiatement engendré par le gradient du potentiel chimique. Ce flux d'absorption est typiquement un processus de diffusion qui varie avec $\Delta t^{1/2}$. On peut donc voir que, pour un temps suffisamment court, le flux d'absorption qui varie avec $\Delta t^{1/2}$ peut être très grand devant le flux d'eau d'arrivée sous action de la force capillaire. Cela signifie que le film d'eau à la ligne de contact a tendance à avancer mais il est immédiatement absorbé dans l'hydrogel. Dans ces conditions nous n'avons donc pas de nouvelle surface mouillée, et par conséquent pas d'énergie de surface gagnée par le mouillage. La ligne de contact n'a plus de moteur pour avancer et ainsi montre un angle de contact apparent à 90°.

Certes, au fur et à mesure, la teneur en eau dans l'hydrogel augmente et le flux d'absorption par la diffusion va devenir de moins en moins faible. Lorsque la teneur en eau dans l'hydrogel atteint une valeur critique, l'interface peut enfin restaurer un angle de contact plus petit qui lui permet d'avancer d'une petite distance. Comme la montée capillaire et l'adsorption via l'eau liquide sont des processus très rapides, la dynamique de l'interface est finalement associée à l'évolution de la teneur en eau dans la paroi, qui est elle-même contrôlée par la diffusion.

Finalement, on peut simplifier le problème en 1D, comme un processus de diffusion depuis une zone de concentration élevée (la surface d'eau liquide) à une zone de faible concentration (la partie de l'hydrogel déshydraté située le plus loin de la surface d'eau). Le problème peut être décrit ainsi : à temps initiale t_0, l'interface eau-air se situe dans le capillaire à $X_0 = 0\ cm$. Dans les deux milieux séparés par l'interface, les distributions de concentration sont données par :

$$\partial C_1/\partial t = D_1 \partial^2/\partial x_1^2 \tag{4.4}$$

$$\partial C_2/\partial t = D_2 \partial^2/\partial x_2^2 \tag{4.5}$$

La concentration initiale d'eau dans la paroi d'hydrogel est C_∞ ($C_\infty < 1$). Nous avons les conditions initiales définies comme :

$$x > X_0 : C(x,t)\,|_{t=t_0} = C_\infty \tag{4.6}$$

$$x \leqslant X_0 : C(x,t)\,|_{t=t_0} = 1 \tag{4.7}$$

À t_0, la diffusion longitudinale commence dans la direction x, $C(x,t)$ augmente progressivement devant l'interface pour tous les $x > X$. Lorsque la concentration à x proche de l'interface atteint une valeur critique C_f ($C_f < 1$), l'angle de contact permet à l'interface d'effectuer un petit incrément ΔX. La conséquence de ce déplacement est que l'eau liquide entre en contact avec une nouvelle zone d'hydrogel non-saturé, ce qui y induit l'augmentation immédiate de la concentration d'eau, de C_f à C_x. Nous avons dans ces conditions $0 \ll C_f < C_x < 1$. Ensuite, la diffusion dans la direction x continue, ce qui permet aux nouvelles zones d'atteindre C_f et ainsi l'avancée de l'interface se prolonge.

L'analyse du problème ci-dessus nous permet de réaliser qu'il s'agit d'un problème de diffusion avec des conditions aux limites variables dans le temps. On observe une variation abrupte dans le profil de concentration d'eau entre une région où les molécules d'eau diffusent librement et une autre où les sites d'adsorption pour l'eau sont presque tous occupés. Par ailleurs, cette interface avance au cours du temps. D'un point de vue mathématique, on se rend compte qu'il s'agit d'un cas analogue aux transferts de chaleur dans un milieu qui implique un changement de phase, telle la fonte de glace : dans un milieu semi-infini en 1D (la glace), pour $x \in [0, +\infty]$ à temps zéro ($t = 0$), la température de la glace est homogène à T_∞ ($T_\infty < 0°C$). Un flux de chaleur introduit au bord gauche à $x = 0$ fait fondre progressivement la glace lorsque la température T est augmenté à 0°C. Nous avons dans ce cas un changement de phase, la région $[0, X(t)]$ occupée par l'eau liquide tandis que $[X(t), +\infty]$ toujours occupée par la glace. De plus, à l'interface $X(t)$ le changement de phase solide-liquide est accompagné de la libération de la chaleur latente. On peut alors voir que les solutions pour l'équation de diffusion et ses dérivées sont discontinues à l'interface. Ce problème est appelé le problème de Stefan.

Notre but ici ne va pas être de chercher à trouver les solutions pour traiter le problème de Stefan mais de bien comprendre le phénomène de l'avancée de l'interface et d'expliquer la dynamique. Dans notre cas, la zone d'hydrogel en contact direct avec la colonne d'eau dans le capillaire est analogue à la zone de la glace fondue (zone liquide) ; la zone d'hydrogel située devant l'interface est analogue à la zone de glace. Les transferts

d'eau dans la paroi d'hydrogel sont alors similaires aux transferts de chaleur. L'ouvrage de CRANK [1975] (p.308) discute en détail du problème de diffusion avec des conditions aux limites variables, on peut trouver directement les solutions mathématiques du problème de Stefan.

Pour simplifier le problème, nous supposons que le coefficient de diffusion D dans l'hydrogel ne dépend pas de la concentration ($D = D_1 = D_2$ dans l'Eq.4.4 et l'Eq.4.5). Ainsi, contrairement au problème de la glace fondante qui implique une différence de densité entre les milieux 1 et 2, nous supposons ici que la densité est homogène ($\rho_1 = \rho_2$). Avec les conditions aux limites (voir Eq.4.6 et Eq.4.7), nous pouvons alors trouver les solutions pour notre problème. Nous avons pour la concentration d'eau dans l'hydrogel devant l'interface ($x > X$) :

$$C(x,t) = C_\infty + (C_f - C_\infty)\frac{erfc(x/2\sqrt{Dt})}{erfc(\beta)} \tag{4.8}$$

et dans la région d'hydrogel en contact avec la colonne d'eau liquide ($0 < x < X$) :

$$C(x,t) = 1 - (1 - C_x)\frac{erf(x/2\sqrt{Dt})}{erf(\beta)} \tag{4.9}$$

où erf(x) est la fonction d'erreur définie par :

$$erf(x) = \frac{2}{\pi}\int_0^x e^{-t^2}dt \tag{4.10}$$

et erfc(x) la fonction d'erreur complémentaire :

$$erfc(x) = 1 - erf(x) \tag{4.11}$$

La position de l'interface est donnée par :

$$X = 2\beta\sqrt{Dt} \tag{4.12}$$

où β est un coefficient constant qui dépend les propriétés du milieu : C_f, C_x et la concentration initiale C_∞.

Les équations 4.8 et 4.9 avec les conditions initiales 4.6 et 4.7 nous permettent d'illustrer le modèle (voir Fig.4.10) par un schéma qui montre comment la distribution d'eau évolue par rapport à l'interface. La discontinuité du gradient de concentration est présente à l'interface à $x = X$.

Le modèle et la simulation précédants nous montrent que l'interface déterminée par une valeur critique de concentration avance avec la racine carrée du temps, ce qui est cohérent avec nos observations (voir Fig.4.5). On peut également voir que la force capillaire qui dépend du diamètre du capillaire, n'intervient pas dans le modèle. La dynamique de l'interface est essentiellement contrôlée par la diffusion, ce qui nous permet d'expliquer l'absence d'influence du diamètre de capillaire sur les résultats expérimentaux. Cependant il faut quand même noter qu'il y a toujours une compétition entre l'adsorption et

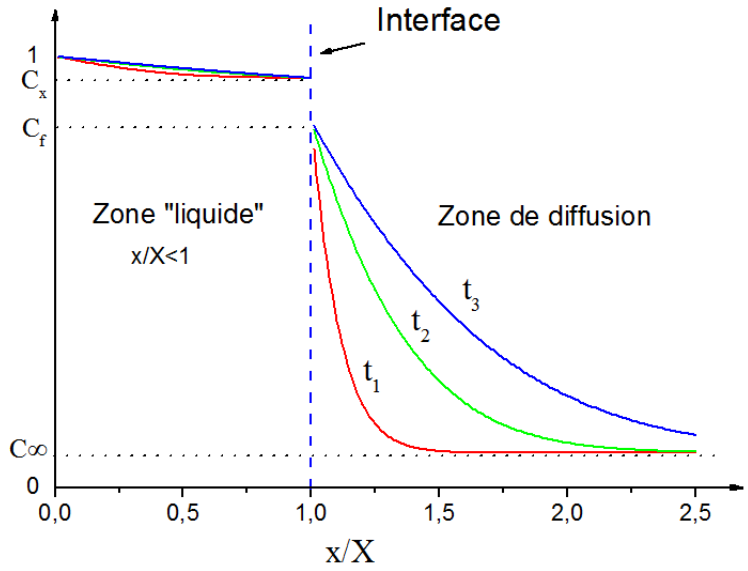


FIGURE 4.10 – Distribution de la concentration d'eau dans l'hydrogel en fonction de x/X. L'interface se situe à x/X = 1 et sépare la zone de "diffusion" de la zone "liquide". Les trois couleurs montrent la concentration à trois temps différents : $t_1 < t_2 < t_3$.

la montée capillaire. Dans le modèle nous ne discutons que le cas où la gravité est négligeable. Pourtant il faut bien considérer que, lorsque h augmente, l'interface avance de plus en plus lentement et devient de plus en plus courbée. Finalement l'interface va se stabiliser à une hauteur qui ne peut pas dépasser $h_{max} = 2\gamma cos\theta/\rho g$R, où θ est l'angle de contact que nous observons dans les gels saturés.

Par ailleurs, on peut aussi remarquer que nous n'observons pas de différence avec la teneur en eau initiale C_∞ dans l'hydrogel dans le cadre de 8-25 wt%. Cela pourrait s'expliquer par le fait que C_f est une valeur très grand devant C_∞ et que le coefficient β ne varie pas significativement lorsque C_∞ reste petit devant C_f. Il serait intéressant dans les futurs travaux d'étudier l'impact de C_∞ à hautes humidités.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la dynamique d'imbibition dans un système modèle où la structure essentielle (vaisseau et paroi) et les propriétés physiques du bois sont bien représentées. Nous avons mis en place un protocole expérimental qui nous permet d'étudier la dynamique de l'interface au cours de l'imbibition dans un « bois artificiel ».

Dans un premier temps, nous avons comparé les résultats d'imbibition avec des hydrogels saturés et déshydratés. Dans les gels saturés où on peut supposer qu'il n'y a pas de diffusion dans la paroi, l'imbibition suit globalement la loi de Washburn malgré un facteur de 0,3 qui pourrait être expliqué par la déformation locale de la paroi molle à la ligne de contact. Au contraire, si l'hydrogel est déshydraté et si l'eau peut diffuser dans la

paroi au cours de l'imbibition, nous avons observé une dynamique de plusieurs ordres de grandeur plus lente. Ces résultats sont comparables aux résultats d'imbibition dans le bois avec de l'eau : la dynamique d'imbibition dans les vaisseaux est contrôlée par l'adsorption et la diffusion de l'eau liée dans les parois cellulaires.

Ensuite, nous sommes intéressés à la forme de l'interface eau-air dans le capillaire. De nouveau, nous avons remarqué que les conditions de mouillage dépendent de la teneur en eau dans la paroi : dans le gel saturé nous avons un ménisque classique avec un petit angle de contact, alors que dans le gel déshydraté on observe un déplacement très lent avec une interface plane. Nous pouvons aussi trouver des observations analogues dans le bois avec les images Synchrotron, sur lesquelles on peut identifier deux zones, dont une zone humide avec des ménisques et une zone d'imbibition avec des déplacements d'interfaces pratiquement planes.

Par ailleurs, un des avantages de l'hydrogel est que nous pouvons directement observer la diffusion dans la paroi d'hydrogel sous forme du front de déformation, grâce à un effet d'optique. Le front de déformation reste devant l'interface, ce qui est cohérent avec nos résultats d'IRM obtenus avec les échantillons de bois.

Enfin, l'étude sur la dynamique de l'interface nous permet de réaliser que le phénomène d'imbibition dans un milieu absorbant est mathématiquement analogue au problème de la glace fondante où le processus de diffusion est accompagné d'un changement de phase. Des solutions mathématiques déjà existantes nous permettent de proposer un modèle simple pour décrire le phénomène.

4.5 Références

ANDERSSON, J., A. STRÖM, T. GEBÄCK et A. LARSSON. 2017, «Dynamics of capillary transport in semi-solid channels», *Soft Matter*, vol. 13, nº 14, doi :10.1039/C6SM02305C, p. 2562–2570, ISSN 1744-683X. URL http://xlink.rsc.org/?DOI=C6SM02305C. 166

CRANK, J. 1975, *The mathematics of diffusion*, Clarendon Press, Oxford. 178

MONTEUX, C., A. TAY, T. NARITA, Y. DE WILDE et F. LEQUEUX. 2009, «The role of hydration in the wetting of a soluble polymer», *Soft Matter*, vol. 5, nº 19, doi :10.1039/b907015j, p. 3713, ISSN 1744-683X. URL http://xlink.rsc.org/?DOI=b907015j. 173

TAY, A., D. BENDEJACQ, C. MONTEUX et F. LEQUEUX. 2011, «How does water wet a hydrosoluble substrate?», *Soft Matter*, vol. 7, nº 15, doi :10.1039/c1sm05419h, p. 6953, ISSN 1744-683X. URL http://xlink.rsc.org/?DOI=c1sm05419h. 173

TAY, A., C. MONTEUX, D. BENDEJACQ et F. LEQUEUX. 2010, «How a coating is hydrated ahead of the advancing contact line of a volatile solvent droplet», *European Physical Journal E*, vol. 33, nº 3, doi :10.1140/epje/i2010-10662-7, p. 203–210, ISSN 12928941. 173

VINCENT, O., P. MARMOTTANT, P. A. QUINTO-SU et C. D. OHL. 2012, «Birth and growth of cavitation bubbles within water under tension confined in a simple synthetic tree», *Physical Review Letters*, vol. 108, nº 18, doi :10.1103/PhysRevLett.108.184502, p. 1–5, ISSN 00319007. 164

WHEELER, T. D. et A. D. STROOCK. 2008, «The transpiration of water at negative pressures in a synthetic tree.», *Nature*, vol. 455, n° 7210, doi :10.1038/nature07226, p. 208–12, ISSN 1476-4687. URL http://dx.doi.org/10.1038/nature07226. 164

Chapitre 5

Séchage du bois

Sommaire

5.1 Séchage d'un milieu poreux modèle saturé de liquide 184
5.2 Séchage longitudinal du bois 187
5.2.1 Séchage de dodécane 188
5.2.1.1 Distribution de dodécane 188
5.2.1.2 Analyse des régimes de séchage 190
5.2.1.3 Discussion 191
5.2.2 Séchage d'eau 191
5.2.2.1 Comportement macroscopique 191
5.2.2.2 Distribution de saturation dans l'échantillon 193
5.2.2.3 Analyse des régimes de séchage 198
5.2.3 Conclusion 200
5.3 Séchage du bois selon les directions transversales 201
5.3.1 Suivi de masse macroscopique 201
5.3.2 Distribution dans l'échantillon 203
5.3.2.1 Direction radiale 203
5.3.2.2 Direction tangentielle 205
5.3.3 Discussion 206
5.4 Conclusion 207
5.5 Références 207

Dans ce chapitre, nous allons étudier le phénomène de séchage du bois de feuillu (le peuplier), notamment en utilisant les séquences d'IRM développées pendant l'étude sur l'imbibition. Rappelons que la structure du peuplier est fortement anisotrope. On peut considérer que les échantillons de peuplier sont composés principalement de tubes cylindriques parallèles ayant des parois absorbantes, entourés par des fibres courtes et fermées. Afin de comprendre l'organisation du chapitre, il est nécessaire de se rappeler du mécanisme d'évaporation d'eau depuis un tube vertical (voir Section.1.1.2.3). Dans le cas où la section du tube est circulaire, dès le début du séchage on observe le démouillage de la paroi associé à un taux de séchage décroissant. L'interface eau-air recule dans le tube sous forme d'un ménisque, en dessous duquel le tube est saturé en eau. Au contraire, si la section du tube est polygonale, les coins de la section permettent la formation de films d'eau restant accrochés à l'entrée du tube tout en laissant un ménisque principal progresser dans le tube. La dynamique de séchage dans ce cas est caractérisée d'abord par un régime à vitesse constante (évaporation principalement près de la surface libre), suivi par un régime à taux de séchage décroissant (détachement des films d'eau de la surface libre). Par ailleurs, nous avons vu que la dynamique de séchage dans un milieu poreux granulaire est globalement similaire à celle pour un tube à section polygonale (voir Section.1.1.2.3).

Pour le séchage de bois, afin de comprendre les rôles de l'eau liée et de l'eau libre pendant le séchage, les résultats avec l'eau pure seront comparés avec ceux obtenus pour un liquide apolaire et volatil : le dodécane ($C_{12}H_{26}$). Par ailleurs, le séchage sera étudié dans les trois directions d'échantillons, puisque dans l'industrie le séchage du bois s'effectue aussi selon les directions transversales.

Ce chapitre est finalement organisé de la manière suivante :

— On commence par le séchage d'un milieu poreux modèle : l'empilement de billes de verre, avec de l'eau ou du dédocane. Les résultats constituent des références pour nous aider à comprendre ce qui se passe avec le bois ;

— On présente ensuite le séchage du peuplier dans la direction longitudinale. Suivant cette direction le peuplier présente une géométrie plus simple et le transport de vapeur d'eau est plus efficace dans les passages ouverts. Le séchage du bois rempli de dodécane sera étudié dans un premier temps. Grâce au dodécane qui n'entre ni dans les parois ni dans les fibres, nous pourrons étudier la répartition du liquide seulement dans les vaisseaux et la dynamique de séchage correspondante. Dans un deuxième temps, on présentera les résultats du séchage d'eau en distinguant l'eau libre et l'eau liée.

— Pour finir, on présentera l'étude du séchage du peuplier selon les directions transversales, pour lesquelles la structure du milieu est plus complexe.

5.1 Séchage d'un milieu poreux modèle saturé de liquide

Afin de vérifier les régimes de séchage établis dans la littérature avec l'eau et le dodécane, nous commençons par des expériences macroscopiques sur le séchage d'un milieu

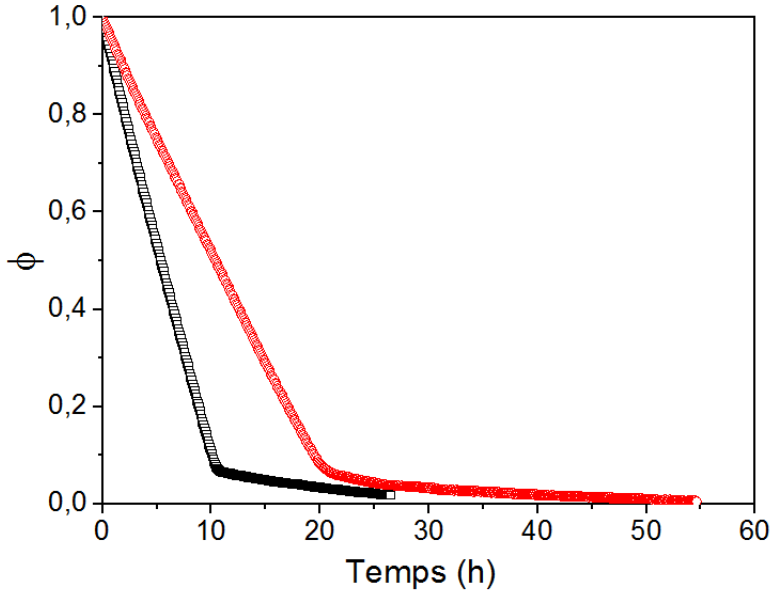


FIGURE 5.1 – Évolution de la saturation moyenne ($\phi = V_{liquide}/V_{pore}$) en fonction du temps pour des empilements de billes de verre pendant des expériences de séchage : eau distillée (noir), dodécane (rouge).

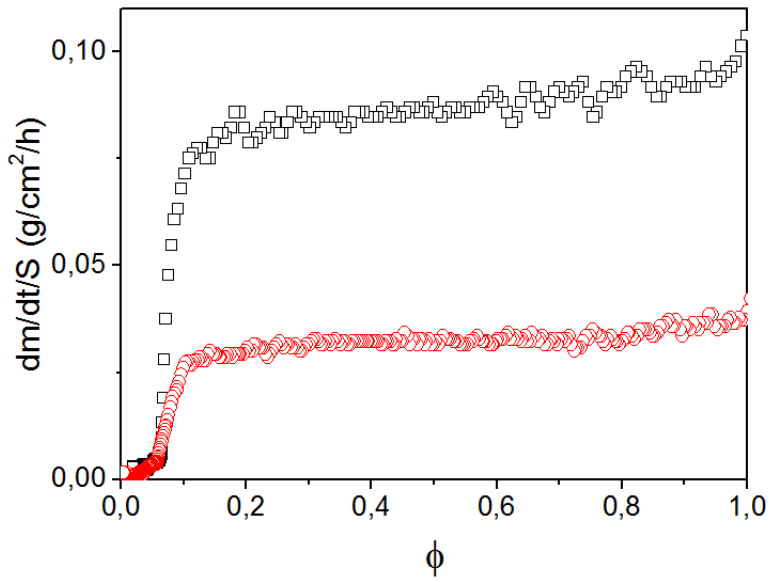


FIGURE 5.2 – Taux de séchage $\frac{dm}{dt}\frac{1}{S}$ en fonction de la saturation moyenne ϕ pour l'eau distillée (noir) et le dodécane (rouge).

granulaire - des empilements de billes de verre. La taille de billes de verre est comprise entre 200 et 250 µm. La porosité du milieu est donnée par une mesure de masse ($\varepsilon \sim 0,36$), une valeur proche de la porosité d'un empilement compact. La vitesse de l'air est contrôlé à 1 m/s.

L'empilement de billes de verre est initialement saturé en eau distillée ou en dodécane. Il est ensuite séché grâce au dispositif décrit dans la section 2.2.2 (voir Fig.2.15). Nous mesurons la masse de liquide pendant l'expérience et on présente l'évolution de la saturation ϕ ($\phi = V_{liquide}/V_{pore}$) en fonction du temps (voir Fig.5.1). Les taux de séchage en fonction de la saturation sont présentés sur la Fig.5.2.

Dans un premier temps, on remarque que les courbes de séchage pour l'eau et pour le dodécane sont globalement similaires (voir Fig.5.1). On peut distinguer sur les deux courbes deux régimes : le premier régime pendant lequel la perte de liquide est significative, la saturation diminue de façon proportionnelle au temps t ; puis à partir d'une certaine valeur de ϕ, un second régime commence, pendant lequel le taux de séchage est largement réduit. On peut alors remarquer un changement abrupt de pente. Les deux régimes apparaissent aussi plus clairement sur la Fig.5.2 lorsqu'on trace le taux de séchage en fonction de la saturation du milieu. On observe d'abord aux tous premiers instants, une baisse du taux de séchage qui atteint ensuite rapidement un plateau à un taux de séchage constant ($0,085\ g/cm^2/h$ pour l'eau et $0,031\ g/cm^2/h$) jusqu'à environ $\phi \simeq 0,1$. Ceci indique qu'environ 90% de liquide s'évapore à une vitesse constante. Ensuite dans le second régime pour $\phi < 0,1$, le taux de séchage décroît rapidement.

Nous avons vu dans la partie 1.1.2.2 que, pendant le régime à taux de séchage constant, la force capillaire est suffisamment élevée pour maintenir la surface libre humide. L'évaporation a lieu à partir de la surface libre de l'échantillon sur une épaisseur de couche limite δ.

Eau pure Prenons d'abord l'eau comme un exemple d'analyse. Avec l'Eq.1.19 qui relie le taux de séchage avec δ, on peut obtenir :

$$V_e = -\frac{1}{\rho_0 S}\frac{dm}{dt} = D\frac{n_{sat} - n_o}{\rho_0 \delta} \simeq 2,5 \times 10^{-7} m/s \tag{5.1}$$

$$\delta \simeq 2,5 mm \tag{5.2}$$

où S est la surface de l'échantillon, le taux de séchage par unité de surface $\frac{dm}{dt} \cdot \frac{1}{S}$ est directement donnée sur la Fig.5.2, ρ_0 est la densité de l'eau liquide $1\ g/cm^3$, n_{sat} la densité de vapeur d'eau saturante ($23,4\ g/cm^3$ à 25°C), D le coefficient de diffusion de la vapeur dans l'air ($2,7 \times 10^{-5}\ m^2/s$ à 25°C). On prend $n_0 = 0\ g/cm^3$ pour la densité de vapeur d'eau de l'air extérieur.

On obtient ainsi une épaisseur de couche limite de 2,5 mm sur laquelle la vapeur d'eau doit diffuser pour s'échapper du système. Cette épaisseur est du même ordre de grandeur que l'épaisseur du canal (5 mm) où souffle de l'air sec.

Rappelons que le premier régime prend fin quand la pression capillaire n'est plus suffisamment forte pour maintenir la vitesse d'évaporation constante à la surface libre. La

perméabilité dépend de la saturation du milieu selon l'équation.1.20. On peut réécrire l'équation.1.20 comme :

$$V_{cap} = \frac{2F(\omega)G(\phi)r\gamma}{\mu H_0} \tag{5.3}$$

où F(ε) est une fonction de la porosité (Eq.1.22) et G(ϕ) une fonction de la saturation du réseau (Eq.1.23).

Avec l'équation 5.3 on peut comparer la vitesse de montée capillaire V_{cap} avec la vitesse d'évaporation. Au début du séchage le milieu est saturé, nous avons donc $\phi = 1$. Avec $F(0,35) \simeq 2 \times 10^{-3}$ et la hauteur de l'empilement $H_0 = 28\ mm$, nous obtenons :

$$V_{cap}(\phi = 1) = 10^{-3}\ m/s \tag{5.4}$$

Nous sommes donc bien dans le régime constant où $V_{cap} = 10^{-3}\ m/s \gg V_e \simeq 2,5 \times 10^{-7}\ m/s$. Lorsque la perte de liquide dans le milieu poreux continue, G(ϕ) diminue rapidement. On trouve sur la Fig.5.2 la valeur critique de la saturation $\phi_c \sim 0,1$, autour de laquelle V_{cap} devient comparable avec V_e, on observe ainsi l'entrée dans le deuxième régime.

Dodécane De la même manière, nous pouvons calculer l'épaisseur de la couche limite pendant le régime à taux de séchage constant.

Nous n'avons pas trouvé la densité maximale de vapeur dans l'air (n_{sat}) pour le dodécane. Mais nous connaissons la pression de vapeur saturante de dodécane à 25°C qui est de $0,135 mmHg$, soit 18 Pa. À l'aide de la loi des gaz parfaits, $PV = nRT$, on obtient alors $n_{sat} = 1,237\ g/m^3$. Nous ne connaissons pas non plus le coefficient de diffusion du dodécane dans l'air, mais nous avons celui pour le décane ($C_{10}H_{22}$) $6 \times 10^{-6} m^2/s$. Avec seulement deux carbones de plus, nous pouvons considérer que le coefficient de diffusion du dodécane est du même ordre de grandeur. Nous avons donc :

$$V_e = -\frac{1}{\rho_0 S_0}\frac{dm}{dt} = D\frac{n_{sat} - n_o}{\rho_0 \delta} \simeq 1,2 \times 10^{-7} m/s \tag{5.5}$$

$$\delta \approx 0,083\ mm = 83\ \mu m \tag{5.6}$$

Remarquons dans le cas du dodécane nous obtenons une épaisseur de couche limite très petite par rapport à celle dans le cas de l'eau, alors que les conditions extérieures (flux d'air, température, etc) sont les mêmes. Nous ignorons pour l'instant l'origine de cette différence, mais nous suggérons que la nature du liquide (la volatilité par exemple) pourrait jouer un rôle sur la dynamique d'évaporation.

5.2 Séchage longitudinal du bois

Les expériences de séchage d'échantillons de peuplier sont principalement effectuées à l'aide de l'IRM qui nous permet à la fois d'obtenir la distribution de liquide dans les échantillons et d'étudier le comportement macroscopique. Le dispositif de séchage installé dans l'IRM est montré dans la section 2.3.4.2 (voir Fig.2.31). Les dimensions des

échantillons sont environ $1,6(\mathrm{T})\times 3,8(\mathrm{R})\times 3,8(\mathrm{L})\ cm^3$. Les paramètres des séquences d'IRM utilisées sont identiques à ceux des chapitres précédents.

Dans cette partie, nous allons étudier le séchage du peuplier dans la direction longitudinale.

5.2.1 Séchage de dodécane

On commence par une situation relativement simple : le séchage du dodécane. Étant apolaire, le dodécane n'interagit pas avec les parois et reste principalement dans les vaisseaux lorsque l'échantillon est immergé dans le liquide. Cela nous permet d'étudier le mécanisme de séchage au sein des vaisseaux et les propriétés directement liées à la structure interne des vaisseaux, le bois pouvant alors être considéré comme un milieu poreux non déformable.

5.2.1.1 Distribution de dodécane

L'échantillon de peuplier a été initialement imprégné dans du dodécane pendant un jour. La figure dans l'insert de la Fig.5.3 montre la distribution de dodécane après l'imprégnation. On observe d'une part, deux pics aux extrémités de l'échantillon, et d'autre part, un plateau au milieu de l'échantillon montrant une distribution relativement homogène de dodécane. Cette forme en "U" peut être expliquée par les caractéristiques des vaisseaux et des fibres. Au chapitre 3 nous avons déjà pu montrer qu'un fluide apolaire telle l'huile de silicone pénètre principalement dans les vaisseaux. Le plateau observé sur la Fig.5.3 entre 1 et 3 cm peut donc s'expliquer par la porosité des vaisseaux occupé par le dodécane. La teneur en dodécane moyenne ($0,5\ g/g$) correspond à 30% du volume de bois (la densité du dodécane étant $0,75\ g/cm^3$). On trouve donc la même porosité que celle accessible à l'huile de silicone (cf. Section.3.2.3). En revanche, lorsque l'échantillon est immergé dans du dodécane, sur les deux surfaces transversales, les fibres sont directement accessibles. Ceci est l'origine des deux pics observés sur la Fig.5.3, dont la teneur en dodécane est presque deux fois plus élevée qu'au milieu de l'échantillon. La largeur des pics est d'environ 2 mm, une valeur cohérente avec la longueur moyenne des fibres. Par ailleurs, ces deux pics confirme encore une fois que les transferts entre vaisseaux et fibres sont négligeables puis que les fibres du centre de l'échantillon ne se remplissent pas. Finalement, pour que le pic du profils près de la surface libre n'influence pas l'analyse des résultats, nous enlevons une couche de quelques mm d'épaisseur de la partie supérieure de l'échantillon à l'aide d'un microtome.

La Fig.5.3 présente les profils de teneur en dodécane de l'échantillon au cours du séchage. On peut voir qu'après l'enlèvement de quelques mm du matériau, le pic près de la surface libre disparaît. Le signal situé entre 0,5 et 3 cm peut alors être associé au dodécane dans les vaisseaux. Au cours du séchage, les profils reste parallèles pendant toute la durée de l'expérience (75 h), et nous n'observons pas de front sec. Ces profils « uniformes » prouvent que le liquide s'écoule dans les vaisseaux pour s'évaporer en surface.

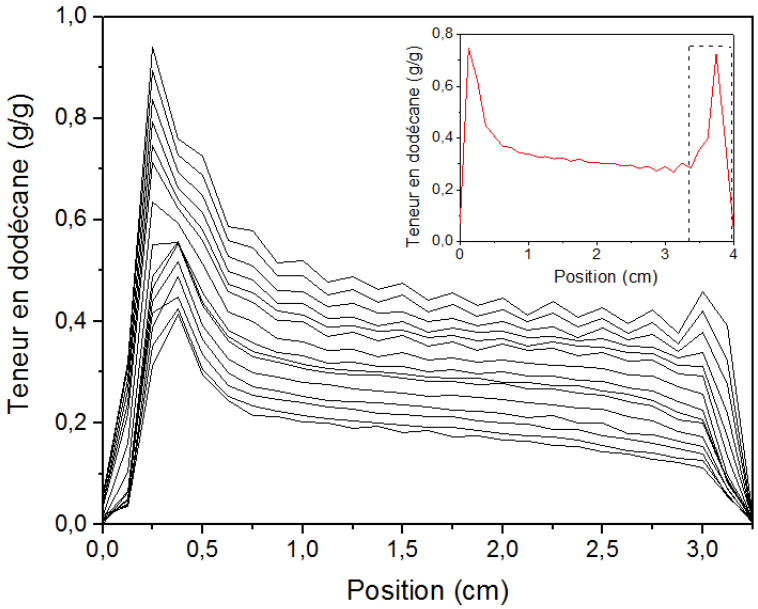


FIGURE 5.3 – Profils de saturation en dodécane suivant la direction longitudinale de l'échantillon. Une couche de quelques mm d'épaisseur de l'échantillon a été enlevée à l'aide d'un microtome avant l'expérience pour enlever le pic de signal près la surface libre. De cette manière, sauf au fond de l'échantillon, le signal dans le reste de l'échantillon (entre 0,5 à 3 cm) est associé au dodécane dans les vaisseaux. La surface libre se situe à 3 cm. L'expérience de séchage dure 75 h et les profils représentent la distribution de dodécane à différents instants : 0, 1, 2, 3, 4, 5, 8, 12, 17, 22, 32, 42, 52, 62, 72 h. Dans l'insert, on présente le profil de distribution de teneur en dodécane d'un autre échantillon sans appliquer le microtome, sur lequel on voit deux pics aux extrémités où les fibres sont directement accessibles au liquide pendant l'imprégnation.

5.2.1.2 Analyse des régimes de séchage

Régime à vitesse constante Il convient ensuite d'étudier la dynamique de séchage. Le taux de séchage par unité de surface $\frac{dm}{dt} \cdot \frac{1}{S}$ est présenté sur la figure de gauche de la Fig.5.4. On peut remarquer que la courbe ressemble à celle observée avec un milieu granulaire : le taux de séchage commence par un plateau avant d'entrer dans un régime à vitesse décroissante. La période à vitesse constante est cependant assez courte puisqu'elle ne concerne que 12% de la masse initiale de dodécane. Avec taux de séchage constant à $0,04\ g/cm^2/h$, nous obtenons $V_e \simeq 1,5 \times 10^{-7}\ m/s$. On peut ainsi en déduire une épaisseur de couche limite $\delta \simeq 66\ \mu m$, valeur proche de celle obtenue dans le milieu poreux modèle (voir l'Eq.5.6) ce qui est logique puisque les conditions extérieures sont similaires.

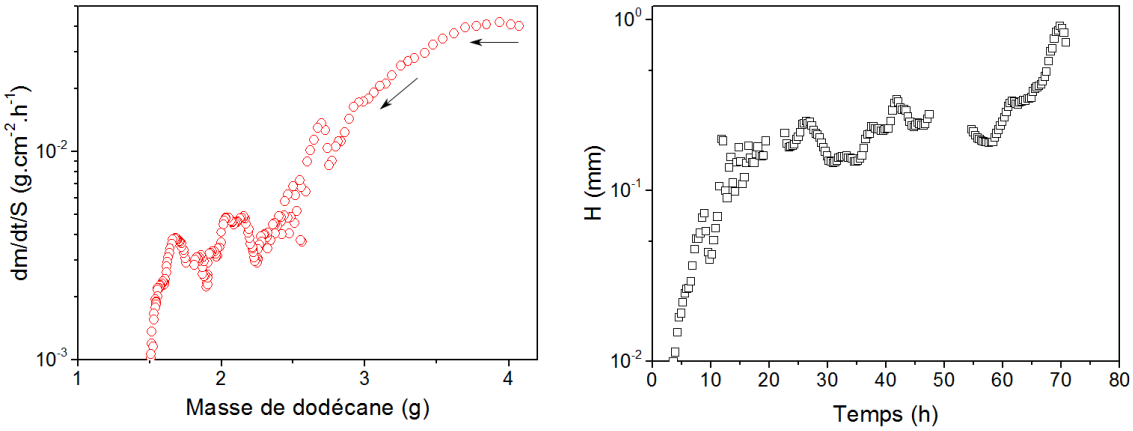


FIGURE 5.4 – **À gauche** : Évolution du taux de séchage obtenu à partir des mesures d'IRM en fonction de la masse de dodécane résiduelle. **À droite** : Position du front sec prédite par le modèle de séchage en fonction du temps.

Régime à taux de séchage décroissant Lorsque la masse de dodécane diminue au-dessous de 3,6 g, le taux de séchage commence à diminuer (voir Fig.5.4). On peut se demander quelle est l'origine de la baisse du taux de séchage en absence de front sec apparent. L'Eq.1.24 donne la relation théorique entre la position du front sec et le taux séchage. On peut déduire la position du front sec théorique, à partir du taux de séchage. Combinant l'équation1.19 et l'équation 1.24, nous avons :

$$H = (\frac{V_0}{V} - 1)\delta^* \tag{5.7}$$

Avec $\delta^* = \varepsilon\delta \approx 20\ \mu m$ (prenons $\varepsilon = 0,3$, la porosité accessible au dodécane), la longueur du front sec théorique est toujours inférieure à 1 mm (cf.figure de droite de la Fig.5.4). Ces faibles valeurs de H proviennent de l'épaisseur fine de la couche limite δ^* : il suffit que le front sec progresse $0,18\ mm$ pour diminuer le taux de séchage par un facteur $(H + \delta^*)/\delta^* = 10$. Étant donné la résolution des mesures par IRM ($1,25\ mm$), il est possible qu'un front sec se développe près de la surface libre sans être invisible à partir des

mesures d'IRM.

5.2.1.3 Discussion

Au cours de séchage, nous constatons une désaturation homogène du dodécane sur toute la longueur de l'échantillon sans front sec apparent, mais une décroissance du taux de séchage qui suggère que ce phénomène se produit néanmoins. Par ailleurs, les vaisseaux ayant une forme tubulaire avec une section plutôt circulaire. Nos observations de la désaturation homogène semblent être en contradiction avec les caractéristiques de séchage dans les tubes capillaires (voir Section.1.1.2.3). Les résultats ne sont cohérents ni avec un tube cylindrique (taux de séchage diminuant dès le début et sans écoulement longitudinal) ni avec un tube à section polygonale (pénétration d'un doigt d'air dans le tube pendant le régime à vitesse constante [KEITA et collab., 2016]). Les profils de la Fig.5.8 montrent que l'entrée d'air est homogène sur toute la longueur des vaisseaux dès le début du séchage, de façon analogue à un milieu poreux modèle. Une explication pourrait être donnée par la structure interne complexe des vaisseaux : les irrégularités sur les parois conduisent des films à s'accrocher sur les parois à certains endroits, et finalement à former des films d'eau continus le long des vaisseaux. Des effets capillaires pourraient s'adapter dans cette condition pour assurer l'écoulement longitudinal.

5.2.2 Séchage d'eau

5.2.2.1 Comportement macroscopique

À l'aide des mesures par IRM, nous pouvons obtenir les courbes de séchage de l'eau dans différents états au cours du temps. Nous avons déjà vu au chapitre 3 que, la séquence ME (Multi-Echo) nous permet de séparer les signaux d'eau liée et d'eau libre. Cependant, à cause du T_2 court de l'eau liée aux faibles teneurs, les mesures d'eau liée avec la séquence ME ne sont plus quantitatives vers la fin de séchage. Afin de résoudre ce problème, en parallèle des mesures ME, des mesures avec la séquence FID, qui nous permet d'obtenir un signal correspondant à l'ensemble de l'eau dans l'échantillon sont réalisées. Pour cela, nous effectuons une boucle de séquences "ME-FID-Temps de repos" : une mesure de ME est immédiatement suivie par une mesure de FID, puis après un temps de repos, la mesure suivante "ME-FID" est réalisée. Étant donné que le processus de séchage est relativement lent par rapport à la durée de la séquence (6 mins pour ME et 3 mins pour FID), on peut considèrer que la masse d'eau reste constante pendant les deux mesures successives de ME-FID. En appliquant le fit bi-exponentiel (voir Section.2.3.3.2, Eq.2.16) nous obtenons d'abord la quantité d'eau libre que nous supposons quantitative. Sous cette condition, la masse d'eau liée corrigée est obtenue en soustrayant la masse d'eau libre (ME) de la masse d'eau totale (FID).

Pendant une expérience de séchage, des mesures de masse par pesées et des mesures de déformation sont également effectuées.

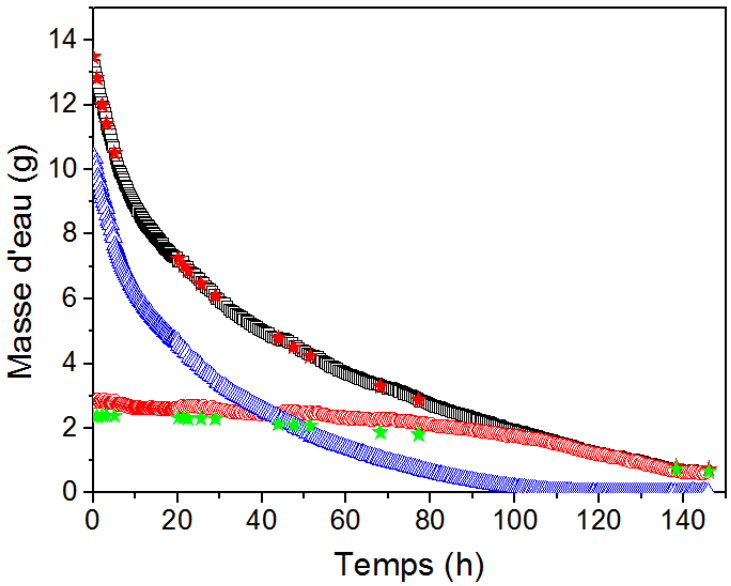


FIGURE 5.5 – Courbes de séchage obtenues par mesure d'IRM : eau totale (carrés noirs), eau libre (triangles bleus), eau liée (cercles rouges). Les mesures macroscopiques sont représentées par des étoiles : suivi par pesées (rouges), masse d'eau liée déduite par les mesures de déformation (vertes).

La Fig.5.5 montre les courbes de séchage obtenues par IRM et par les mesures macroscopiques. Dans un premier temps, nous pouvons remarquer une bonne cohérence entre les mesures par IRM et les mesures macroscopiques. En particulier, vers la fin de l'expérience (entre 130 ~ 150 h), lorsqu'il ne reste plus d'eau libre, la méthode de correction avec la séquence FID nous permet d'obtenir une masse d'eau liée cohérente avec les mesures de déformation (pour l'estimation de la quantité d'eau liée par les mesures de déformation, voir Eq.5.8 plus bas). Notons que le signal d'eau liée n'est plus visible par la séquence ME après 130 h de séchage.

L'échantillon de peuplier contient initialement $13,5\ g$ d'eau, ce qui correspond à MC = 154%. Dans les premières heures, au début du séchage, la masse d'eau diminue linéairement avec le temps. Puis, au fur et à mesure, la perte d'eau ralentit. Cependant, si nous regardons les courbes de l'eau liée et de l'eau libre sur la Fig.5.5, on peut remarquer que les deux se comportent différemment : la courbe de l'eau libre est presque parallèle à la courbe de l'eau totale, avant sa disparition à 100 h. Au contraire, nous observons deux régimes pour l'eau liée : lorsqu'il reste de l'eau libre ($t \leqslant 100\ h$), la masse d'eau liée diminue très lentement avec un faible taux de séchage ($\sim 7,3\ mg/h$) ; ensuite, après le séchage total de l'eau libre, l'eau liée commence à s'évaporer rapidement et son taux de séchage augmente à 30 mg/h. On peut ainsi associer deux régimes pour le séchage total de l'échantillon : dans le premier régime pendant la plupart du temps, l'échantillon perd essentiellement de l'eau libre alors que l'eau liée reste presque constante ; à partir du moment où toute l'eau libre s'est évaporée, on ne mesure que la perte d'eau liée dans le domaine hygroscopique.

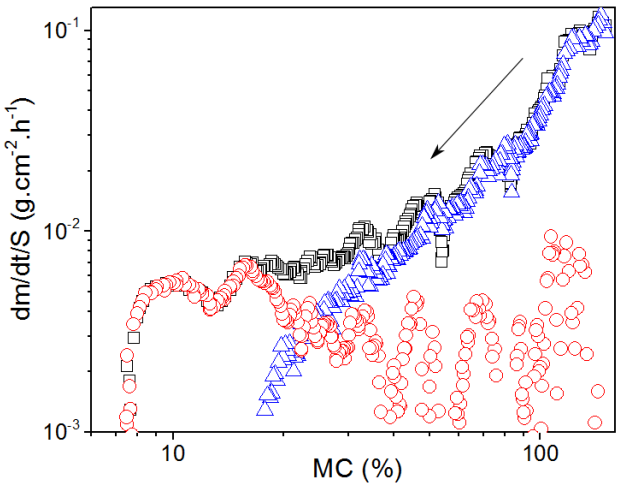


FIGURE 5.6 – Taux de séchage en fonction de la teneur en eau (représentée en MC (%)) : eau totale (carrées noirs), eau libre (triangles bleus) et eau liée (cercles rouges).

Les taux de séchage par unité de surface en fonction de la teneur en eau dans l'échantillon pour différents composants sont présentés sur la Fig.5.6. On observe effectivement que la dynamique de séchage total correspond d'abord au séchage d'eau libre (pour la teneur en eau entre 40-140 %) puis lorsque la teneur en eau est en-dessous de 40%, l'évaporation d'eau liée devient plus importante. A partir du PSF (Point de Saturation de fibres, soit 25% MC), l'évaporation d'eau liée domine finalement le séchage total. Quant au taux de séchage total, il présente d'abord un plateau à vitesse quasi constante pour la teneur en eau entre 110 à 150%, avant d'entrer dans un régime à vitesse décroissante. Notons que pour les teneurs en eau élevées, à cause de la faible variation de la quantité d'eau liée, on observe des fluctuations importantes qui correspondent au bruit de mesures par IRM sur les données de l'eau liée. Ceci n'influencera cependant pas notre analyse des résultats par la suite. Néanmoins, on peut toujours voir qu'au début de l'expérience, le séchage d'eau libre est presque 100 fois plus rapide que le séchage d'eau liée.

5.2.2.2 Distribution de saturation dans l'échantillon

L'identification des deux régimes sur la Fig.5.6 semble être cohérente avec le modèle de séchage dans un milieu poreux granulaire. Nous allons regarder maintenant les profils de teneur en eau pour étudier plus finement ce qui se passe au sein de l'échantillon de peuplier.

Afin de vérifier l'état initial de l'échantillon avant le séchage, regardons d'abord la Fig.5.7. Celle-ci nous montre les profils initiaux de teneur en eau liée et en eau libre. Nous pouvons remarquer que la distribution d'eau est assez homogène sur toute la hauteur de l'échantillon. D'un côté, la teneur en eau liée observée à $0,25\ g/g$ est cohérente avec la valeur de PSF (25%) observée sur la Fig.3.18 pendant l'imbibition (voir Section.3.2.4). Cela signifie que les parois cellulaires sont initialement saturées en eau liée au début du

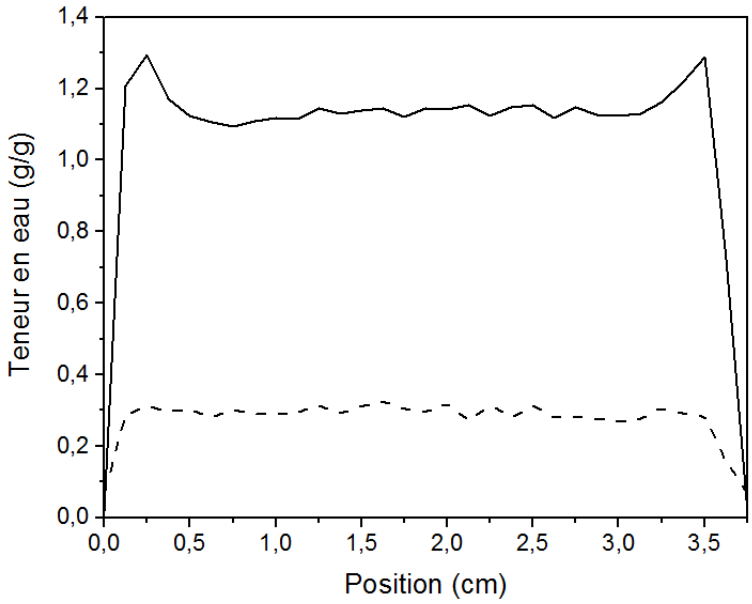


FIGURE 5.7 – Profils initiaux de teneur en eau libre (ligne continue) et en eau liée (ligne pointillée).

séchage. De l'autre côté, la teneur en eau libre est beaucoup plus importante que celle en eau liée. La quantité d'eau libre en moyenne est de $1,1\ g/g$, soit 50 % en volume par rapport au volume de bois. Cela suggère que l'eau libre est présente dans les vaisseaux comme dans les fibres. [1] En outre, on remarque une légère augmentation de la quantité d'eau libre aux deux extrémités de l'échantillon. Cela est probablement dû à un léger excès d'eau liquide dans la première couche de fibres où tous les lumens sont directement accessibles au liquide.

Les Fig.5.8 et Fig.5.9 présentent respectivement les profils d'eau libre et d'eau liée au cours du séchage. Commençons d'abord par l'eau libre (voir Fig.5.8). La surface libre se situe du côté droit de la figure. Compte tenu du régime à vitesse constante observé sur la Fig.5.6, il n'est pas étonnant d'observer dans un premier temps une désaturation homogène sur toute la hauteur de l'échantillon (voir Fig.5.8). Ceci signifie que le rééquilibrage capillaire permet de redistribuer l'eau libre au sein de l'échantillon de bois suivant la direction de séchage. L'air envahit les pores indépendamment de la distance à la surface libre. Ensuite, à partir de 4 h, on observe qu'un front sec se développe et progresse dans l'échantillon. Le front est incliné, montrant alors un gradient de teneur en eau libre entre le plateau et la zone sèche dépourvue d'eau liquide en haut de l'échantillon. Cette forme du front incliné a été déjà observée lors des expériences d'imbibition, où on a pu montrer qu'elle est le résultat de l'hétérogénéité de la structure d'échantillons de peuplier (voir Section.3.2.4). Par ailleurs, pendant la progression du front sec, l'eau libre en dessous du

1. Étant donné que la porosité d'échantillons de peuplier est 0,7, les lumens dans cet échantillon ne sont pas complètement saturés en eau libre. Comme le bois vert contient généralement 150% d'eau, nous arrêtons l'imprégnation d'échantillons lorsque la teneur en eau est supérieure à 150 % et nous commençons le séchage. La teneur en eau maximale est de 180 %. Des expériences répétées avec des échantillons dont la teneur en eau initiale varie entre 150 et 180 % donnent des résultats similaires.

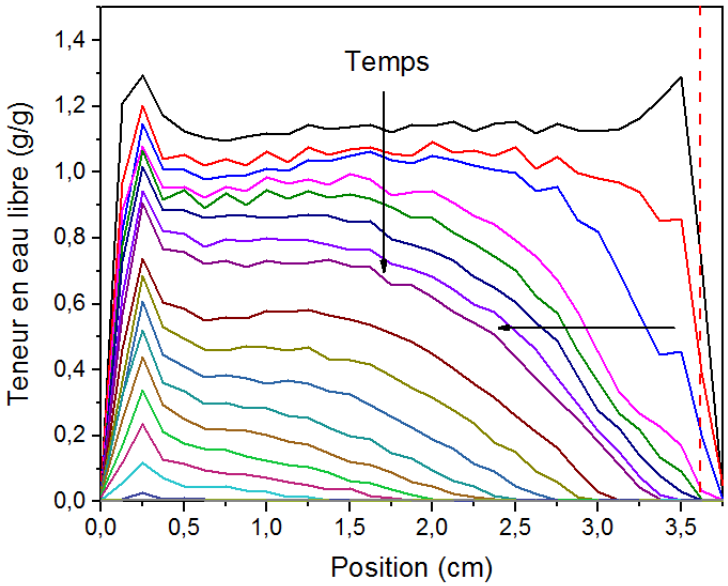


FIGURE 5.8 – Profils de teneur en eau libre au cours du séchage : 0, 2, 4, 7, 9, 12, 16, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100, 110, 115, 120 h. La ligne rouge pointillée indique la surface libre.

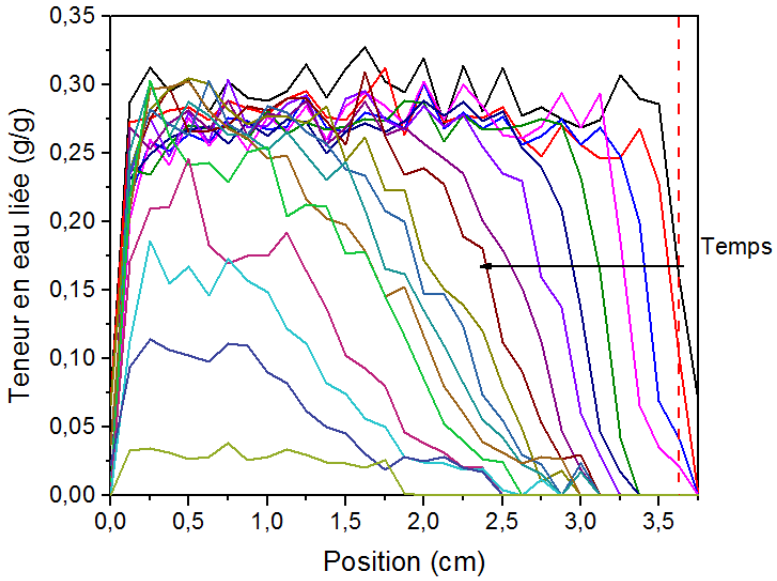


FIGURE 5.9 – Profils de teneur en eau liée au cours du séchage : 0, 5, 12, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 85, 90, 95, 100, 110, 115, 120, 130 h. La ligne rouge pointillée indique la surface libre. Notons que les quantités d'eau liée et d'eau libre évoluent de manière différente. Par souci de clarté, les profils d'eau liée ne sont pas exactement montrés aux mêmes instants que ceux d'eau libre sur la Fig.5.8.

front continue à se vider uniformément.

L'évolution de la distribution d'eau libre est également observée sur les images IRM (voir Fig.5.10). Rappelons que le signal d'eau sur ces images représente essentiellement l'eau libre. Sur la Fig.5.10 on observe d'une part que, l'intensité de signal diminue progressivement sur toute la hauteur de l'échantillon, et d'autre part, qu'une zone sombre sans signal avance dans la profondeur.

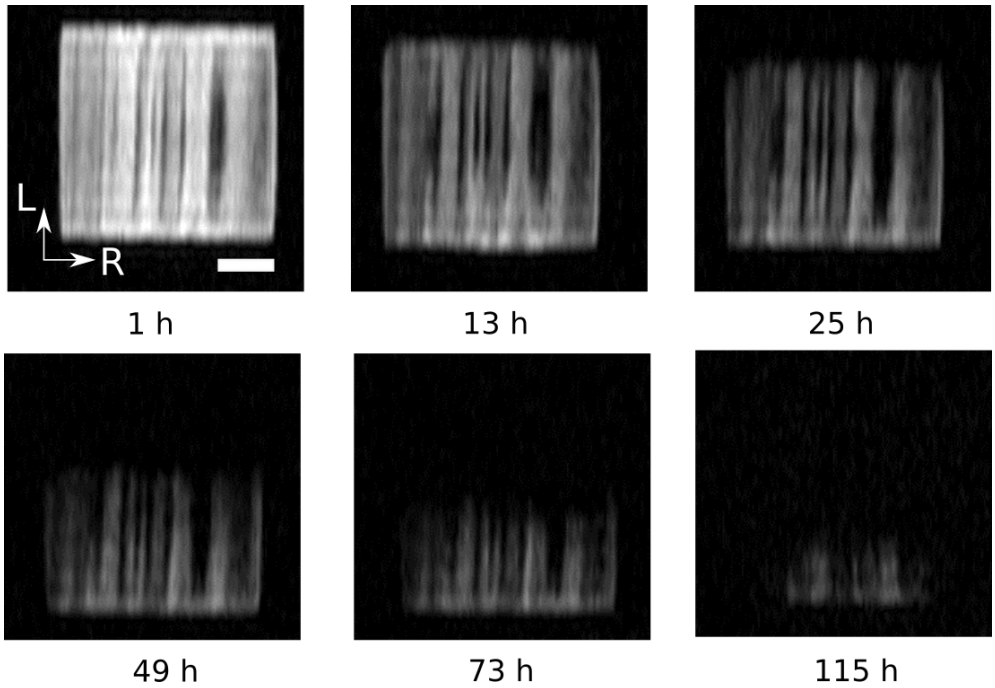


FIGURE 5.10 – Images acquises par IRM à différents instants. Barre d'échelle : 1 cm.

Au contraire, sur les profils d'eau liée sur la Fig.5.9, nous observons essentiellement le développement d'un front sec apparent tandis que l'échantillon ne se désature pas en profondeur. Le front sépare une zone saturée en eau liée en bas de l'échantillon d'une zone partiellement saturée en haut. Cette observation nous rappelle le résultat obtenu en imbibition (voir Fig.3.16). Bien que la quantité d'eau libre diminue progressivement de manière homogène dans l'échantillon, tant que la disparition d'eau libre n'est pas complète, le matériau reste saturé en eau liée sous forme d'un plateau. Afin de vérifier le lien entre les évolutions de l'eau libre et de l'eau liée, nous traçons de nouveau la position du front d'eau libre (considéré à $0,002g/g$) en fonction du temps et la comparons avec celle du front d'eau liée (considéré à $0,015g/g$ en raison de l'hétérogénéité de l'échantillon) sur la Fig.5.11. On voit encore une fois un bon accord entre les dynamiques de l'eau liée et de l'eau libre, ce qui suggère un processus en sens inverse de l'imbibition : les pores se vident d'abord en eau libre avant de se désaturer en eau liée dans les parois cellulaires.

Par ailleurs, nous remarquons que le front sec d'eau liée durant les 100 premières heures sur la Fig.5.9 semble être plus abrupt que celui observé pendant l'imbibition. Est-ce que la forme du profil d'IRM représente bien la vraie forme du front sec ? Pour répondre à cette question, les mesures de déformation sont effectuées en parallèle avec les mesures

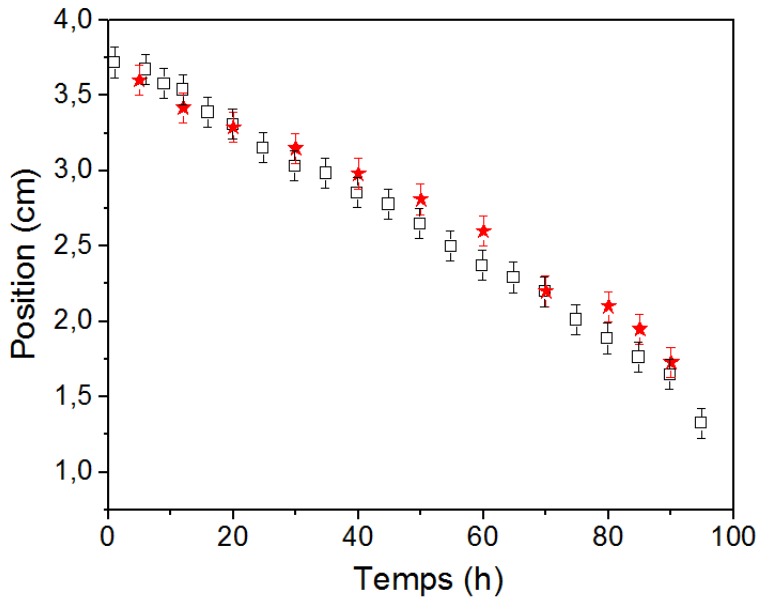


FIGURE 5.11 – Évolution des positions du front d'eau libre (carrés noirs, données mesurées à $0,02g/g$) et du front d'eau liée (étoiles rouges, données mesurées à $0,015g/g$).

par IRM. Lorsque le bois perd de l'eau liée, il subit un retrait qui est lié à la quantité d'eau liée perdue. Avec la relation linéaire entre la variation du volume et la masse d'eau adsorbée (voir Fig.3.7 dans la section 3.1.3.2), on peut établir un lien entre la variation de volume et la masse d'eau liée perdue pendant le séchage :

$$Teneur\ en\ eau\ liée\ (\%) = \mathrm{PSF} - \frac{(\mathrm{S}_0 - \mathrm{S}) \times f}{\mathrm{S}_0 \times \rho_{bois}} \tag{5.8}$$

où S_0 est la section initiale de l'échantillon, S la section au temps t, f le rapport de la variation de masse d'eau liée sur la variation du volume ($f = 0,7$ indiquée par la Fig.3.7). Grâce à l'Eq.5.8 on peut obtenir la distribution d'eau liée le long de la hauteur. Cette méthode est justifiée par la Fig.5.5 qui montre un bon accord entre les mesures de déformation et la masse d'eau liée mesurée par IRM.

Sur la Fig.5.12 on compare les teneurs en eau liée déduites par la déformation avec les profils d'IRM. Au lieu d'un front quasi perpendiculaire à l'axe de l'échantillon qui sépare une zone saturée et une zone sèche, les mesures de déformation montrent que dans la partie supérieure de l'échantillon nous avons plutôt un gradient de concentration d'eau liée. On constate que le dernier profil IRM à 77 h tend vers zéro à $x = 3\ cm$, alors que la mesure de déformation montre qu'il reste au moins $0,13\ g/g$ d'eau liée à cette hauteur, soit la moitié de la quantité en PSF. Au bout de 138 h, l'eau liée ne donne plus de signal d'IRM, alors que les mesures de déformation montrent qu'il existe encore un gradient d'eau liée à faible concentration sur presque toute la longueur de l'échantillon.

Le gradient de concentration d'eau liée observé est donc cohérent avec le schéma du front sec descendant. Lorsque l'interface eau-air recule dans l'échantillon, un gradient

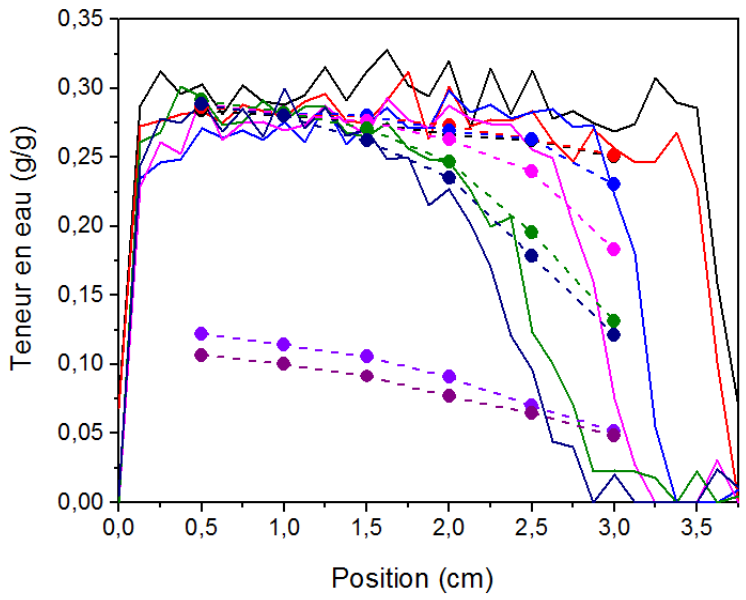


FIGURE 5.12 – Profils d'eau liée mesurés par IRM (lignes) et distribution d'eau liée déduite par mesure de déformation (points ronds). Les profils IRM sont présentés à 0, 5, 29, 48, 68 et 77 h. Les mesures de déformation sont montrées à 0, 5, 29, 47,5, 68, 77, 138 et 146 h.

de la concentration d'eau dans la vapeur se forme. Étant hygroscopique, les parois cellulaires interagissent avec la vapeur d'eau. De plus, ces parois forment elles-mêmes un milieu continu. À la surface libre, elles sont exposées à l'air sec, et contiennent donc très peu d'eau liée. Au contraire, près du front d'eau liquide, les parois sont saturées en eau liée. L'eau liée peut donc diffuser au sein des parois dans la direction de concentration décroissante. Le gradient relevé sur la Fig.5.12 est finalement le résultat des deux phénomènes : rééquilibrage avec la vapeur d'eau dans les pores et flux de diffusion au sein des parois.

5.2.2.3 Analyse des régimes de séchage

En comparant les courbes de séchage (Fig.5.5 et Fig.5.6) avec les distributions de teneur en eau (Fig.5.8 et Fig.5.9), nous pouvons décrire ce qui se passe au cours du séchage d'eau dans le peuplier : au début du séchage nous avons un premier régime avec désaturation en eau libre sur toute la longueur de l'échantillon, suivi par un deuxième régime où un front sec (l'interface eau-air) pénètre progressivement dans l'échantillon. Entre le front d'eau libre et la surface libre, un gradient de concentration d'eau liée se développe ; tandis qu'en dessous du front, l'échantillon continue à se désaturer en eau libre de façon uniforme.

Avec cette vision claire de la répartition d'eau dans l'échantillon, nous pouvons maintenant analyser quantitativement la dynamique du séchage du peuplier.

Dans le premier régime, le taux de séchage résultant de la disparition d'eau liée est né-

gligeable. Pour l'eau libre, le taux de séchage par unité de surface $\frac{dm}{dt} \cdot \frac{1}{S}$ est $0,1\ g/cm^2/h$. Avec l'Eq.1.19 on obtient ainsi $V_e \approx 2,8 \times 10^{-7} m/s$, et la couche limite $\delta \approx 2,3\ mm$. On remarque que cette couche limite est très proche de celle que nous avons trouvée avec le milieu poreux modèle ($\delta \approx 2,5\ mm$). Ce résultat est cohérent avec le fait que les conditions extérieures sont similaires dans les deux types d'expériences.

Ensuite, le séchage continue et un front sec (d'eau libre) de longueur H se développe. Supposons que la densité de la vapeur à la surface libre est n_1. Le taux de séchage est alors $V = D_0 \frac{n_1}{\rho_0 \delta} = (n_1/n_{sat})V_0$. Dans la zone située entre le front sec et la surface libre de l'échantillon, le gradient de vapeur d'eau induit un flux d'évaporation $V_e = D_v \frac{n_{sat} - n_1}{\rho_0 H}$, où $D_v = \varepsilon D_0/\tau$ est le coefficient de diffusion dans l'échantillon (τ étant la tortuosité du milieu). À partir des deux expressions du flux, on obtient $n_1 = \frac{n_{sat}}{1 + D_0 H/D_v \delta}$ et le taux de séchage $V = D_v \frac{n_{sat}}{\rho_0(\delta^* + H)}$. On retrouve ici l'Eq.1.24 avec $\delta^* = (D_v/D_0)\delta$. Cette équation peut être récrite comme :

$$\frac{V_0}{V} - 1 = \frac{\rho_0}{n_{sat} D_v} \cdot H V_0 \tag{5.9}$$

L'équation 5.9 montre que $[V_0/V - 1]$ est proportionnel à HV_0. En prenant la valeur de H au "pied" du front à la teneur en eau à $0,02\ g/g$, on peut tracer $[V_0/V - 1]$ en fonction du produit HV_0 (voir Fig.5.13). Comme prédit par l'Eq.5.9, on observe bien une pente de 1. Cela suggère que la baisse du taux de séchage est induite par l'augmentation de la distance H à travers laquelle l'eau doit diffuser pour s'échapper du système.

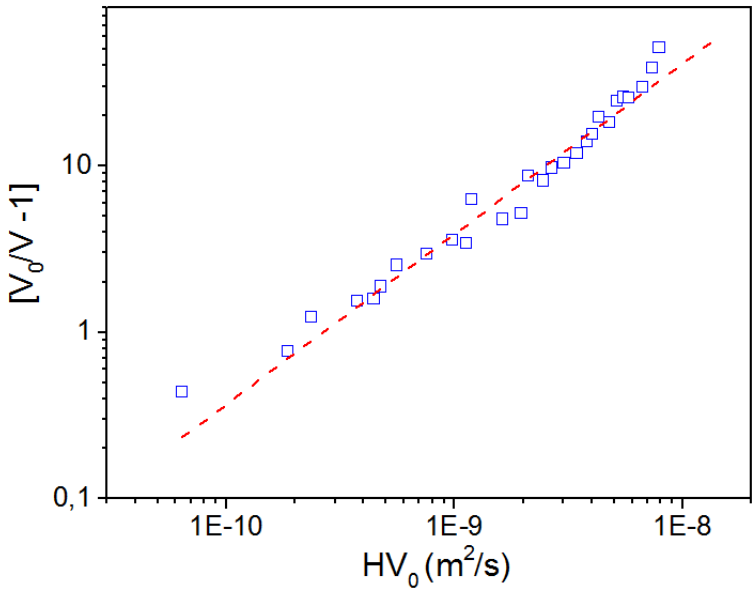


FIGURE 5.13 – Évolution de la vitesse rescalée $[V_0/V - 1]$ en fonction de la distance du front sec H multipliée par le taux de séchage initial V_0. La ligne pointillée a une pente de 1.

Notons que D_v est donné par la porosité et la tortuosité du milieu ($D_v = \varepsilon D_0/\tau$). Comme la pente mesurée sur la Fig.5.13 vaut $3,8\times10^9 s/m^2$, on obtient $D_v = 1,1\times10^{-5} m^2/s$. Avec une porosité $\varepsilon = 0,7$ (la porosité accessible à l'eau), on en déduit la tortuosité du milieu $\tau \simeq 1,7$, une valeur logique en considérant la complexité de la structure d'échantillon. Enfin, sur la Fig.5.14 on compare le taux de séchage d'eau libre mesuré par IRM avec le modèle. En première approximation, on peut considérer que la dynamique de séchage d'eau libre est contrôlée par l'évaporation à partir des interfaces eau-air et puis par la diffusion de la vapeur d'eau dans les pores de l'échantillon.

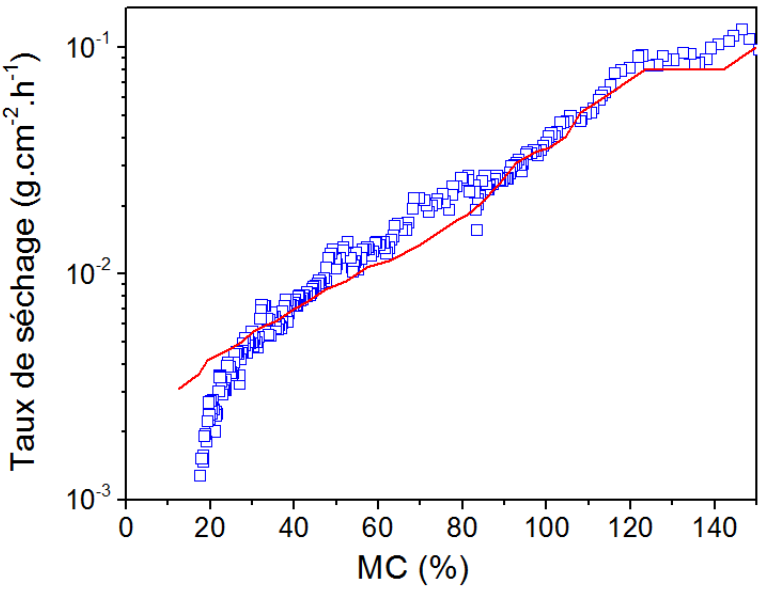


FIGURE 5.14 – Comparaison des taux de séchage entre les mesures d'IRM (eau libre, carrés bleus) et le modèle avec $D_v = 1,1\times10^{-5} m^2/s$ (ligne pointillée).

5.2.3 Conclusion

Nous avons étudié dans cette partie le séchage du peuplier dans la direction longitudinale, avec deux liquides différents : eau et dodécane. Avec le dodécane qui se trouve essentiellement dans les vaisseaux, on observe une désaturation homogène sur toute la hauteur de l'échantillon, durant une première phase courte à vitesse constante puis une deuxième décroissante. La désaturation homogène observée dans les vaisseaux quasi-cylindriques suggère que ce n'est pas un phénomène spécialement lié aux propriétés du liquide mais qui est le résultat de la structure interne du bois, et en particulier celle des vaisseaux qui contiennent des irrégularités. Par conséquent, on s'attend à ce qu'il se produit la même chose avec l'eau : les irrégularités sur la paroi des vaisseaux permettraient de créer de grandes courbures, laissant des interfaces eau/air irrégulières tout en gardant la paroi des vaisseaux mouillée. Effectivement, nous observons les profils parallèles durant le séchage d'eau libre.

Nous avons aussi montré que dans la première phase où le séchage est majoritairement dû à l'évaporation d'eau libre, le modèle avec progression d'un front sec dans l'échantillon semble bien prédire la dynamique du séchage. L'eau liée, quant à elle, "sèche" très lentement durant cette phase, et forme un gradient de concentration dans les parois entre le front d'eau libre et la surface libre.

En se basant sur tous ces résultats, on peut proposer le mécanisme général du séchage longitudinal du bois suivant : 1) de l'eau liée et de l'eau libre s'évaporent de la surface libre de l'échantillon ; mais la vitesse de séchage de l'eau libre est de deux ordres de grandeurs plus grand que celle de l'eau liée ; 2) l'évaporation crée un gradient de concentration d'eau liée depuis la surface libre ; 3) ce gradient impose la position de la fin de la zone saturée en eau liée, qui elle-même décide de la position du front sec d'eau libre ; 4) cette position du front sec impose finalement le taux de séchage de l'ensemble de l'échantillon, car la diffusion de vapeur d'eau dans l'air sur cette distance est plus rapide que la diffusion d'eau liée dans les parois ; 5) pour maintenir cette position du front sec au niveau de la fin du gradient de saturation d'eau liée, il faut donc pomper l'eau libre en profondeur, ce qui se fait finalement sous forme d'une désaturation homogène, comme avec le dodécane ; 6) une fois toute l'eau libre évaporée, l'eau liée commence enfin à s'évaporer significativement.

5.3 Séchage du bois selon les directions transversales

Nous souhaitons désormais étudier la dynamique de séchage du peuplier dans les directions transversales. Compte tenu de l'anisotropie de la structure, on s'attend à voir des comportements différents de ceux observés ci-dessus dans le cas longitudinal.

5.3.1 Suivi de masse macroscopique

Les mesures macroscopiques sont d'abord réalisées à l'aide du dispositif décrit dans la section.2.2.2 (voir Fig.2.15). Les échantillons de peuplier sont découpés de sorte que la section de la surface libre des échantillons soit de $1,7 \times 1,7\ cm^2$, et la longueur de l'échantillon dans la direction de séchage soit $1,8\ cm$. Les courbes de séchage en fonction du temps et les taux de séchage en fonction de la teneur en eau sont présentés sur les Fig.5.15 et Fig.5.16.

Sur la Fig.5.15 on peut voir clairement que le séchage dans les deux directions transversales est significativement plus lent que dans la direction longitudinale. Pour le séchage dans la direction longitudinale, la teneur de masse diminue rapidement d'environ 170% à 60% MC dans les 10 premières heures avant de ralentir. Au bout de 50 h, la teneur en eau est inférieure à 10% MC. En revanche, pour le séchage dans les directions R et T, on constate que sauf pour le tout début de la courbe, la teneur en eau diminue en général plus lentement. Le séchage total de l'échantillon dans la direction radiale est terminé au bout de 140 h, tandis que dans la direction tangentielle il reste encore 60% MC au bout de 140h, ce qui signifie qu'il reste encore de l'eau libre.

La différence de dynamique de séchage est plus évidente si on compare les taux de séchage sur la Fig.5.16. Initialement les trois courbes montrent des taux de séchage de

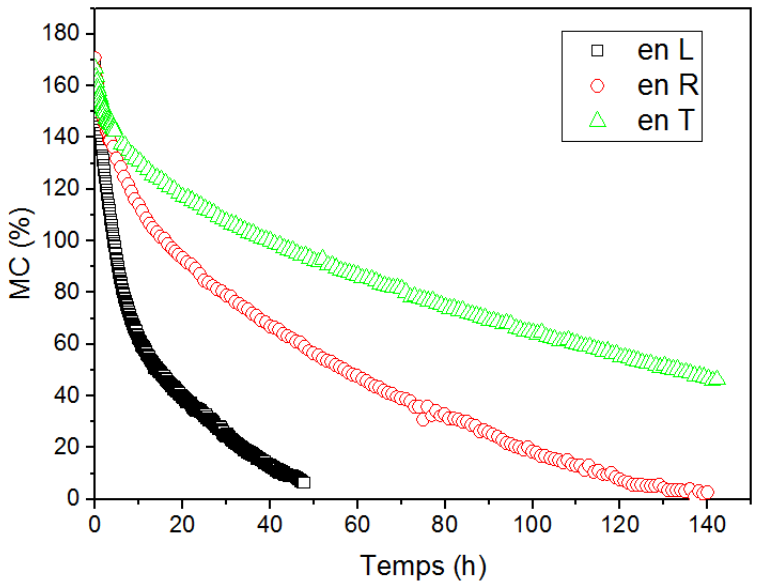


FIGURE 5.15 – Courbes de séchage en fonction du temps dans les trois directions anisotropes : L, R, T.

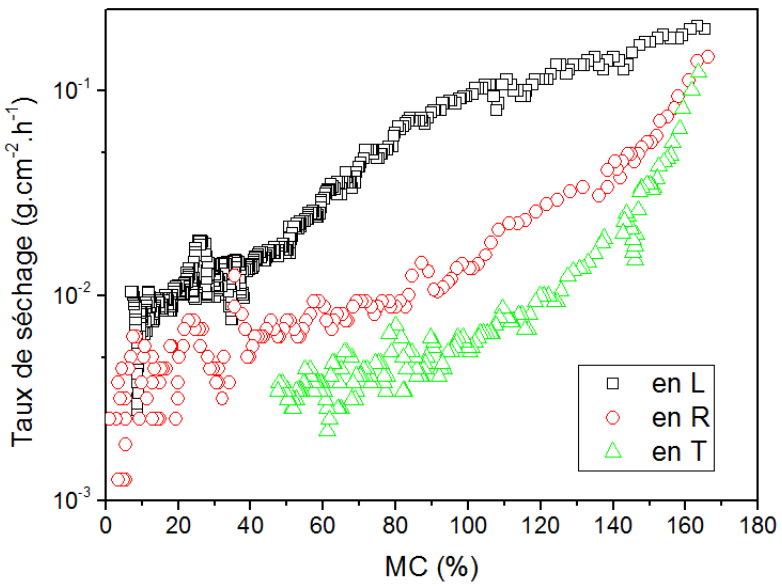


FIGURE 5.16 – Taux de séchage en fonction de la teneur en eau dans les trois directions anisotropes : L, R, T.

même ordre de grandeur. En revanche, contrairement à la direction longitudinale où on constate globalement deux régimes, dans les directions transversales la vitesse de séchage décroît dès le début de l'expérience. La forme de la courbe dans les deux cas est similaire, mais la vitesse dans la direction tangentielle décroît encore plus vite que dans la direction radiale.

Ces résultats pourraient s'expliquer par la structure du peuplier. Lorsque les cellules sont orientées dans les directions transversales, il n'y a plus de passages ouverts comme dans les vaisseaux, et l'eau doit diffuser à travers des multi-couches de parois. La perméabilité au gaz dans la direction transversale peut être 10^{-4} à 10^{-6} plus faible que la perméabilité dans la direction longitudinale [SIAU, 1984]. De plus, des rayons ligneux peuvent servir de passages principaux de transferts dans la direction radiale [SIAU, 1984; WIBERG et MOREN, 1999]. Cela pourrait expliquer pourquoi on observe un taux de séchage plus élevé selon la direction radiale que selon la direction tangentielle.

5.3.2 Distribution dans l'échantillon

Les distributions d'eau dans les échantillons sont obtenues par IRM dans les mêmes conditions expérimentales que celles pour le séchage longitudinal (vitesse du flux d'air, température, section de la surface libre de l'échantillon) sauf pour la longueur d'échantillon dans la direction de séchage. Afin de réduire le temps d'expérience, les échantillons sont découpés pour avoir $1,8\ cm$ selon les directions R ou T. Comme la longueur de l'échantillon est divisé par deux par rapport à celle pour les expériences dans la direction longitudinale, nous avons alors augmenté la résolution des mesures d'IRM par deux ($0,625\ mm$). Dans ce cas, le temps d'écho est légèrement augmenté à 3,57 ms.

5.3.2.1 Direction radiale

On présente d'abord les profils d'eau libre et d'eau liée avant l'expérience de séchage sur la Fig.5.17. Contrairement à la distribution initiale dans la direction longitudinale, l'hétérogénéité de distribution d'eau dans la direction radiale est à la fois observée pour l'eau libre et pour l'eau liée. Typiquement vers $x = 1\ cm$ sur la Fig.5.17 on peut observer une "bosse" sur le profil d'eau liée et un "creux" sur le profil d'eau libre. On a ensuite comparé l'image de la section RT de l'échantillon avec les profils IRM (voir Fig.5.17). On peut remarquer que l'hétérogénéité des profils provient en réalité de la structure hétérogène de l'échantillon. Une limite de cerne se situe vers $1\ cm$, dont la densité est probablement différente que celle des autres cernes.

Ensuite, sur la Fig.5.18, sont présentées les distributions d'eau libre et d'eau liée pendant le séchage dans la direction radiale à différents instants. Pour l'eau libre, un front se développe rapidement dès 2 h après le début de l'expérience. Dans la partie inférieure de l'échantillon, malgré la forme initiale du profil, on constate que la teneur en eau libre diminue sur toute la hauteur même au fond de l'échantillon, mais avec une vitesse beaucoup plus faible par rapport à la direction longitudinale. Ceci suggère que l'écoulement radial existe mais de façon plus limitée que dans la direction longitudinale. Enfin pour

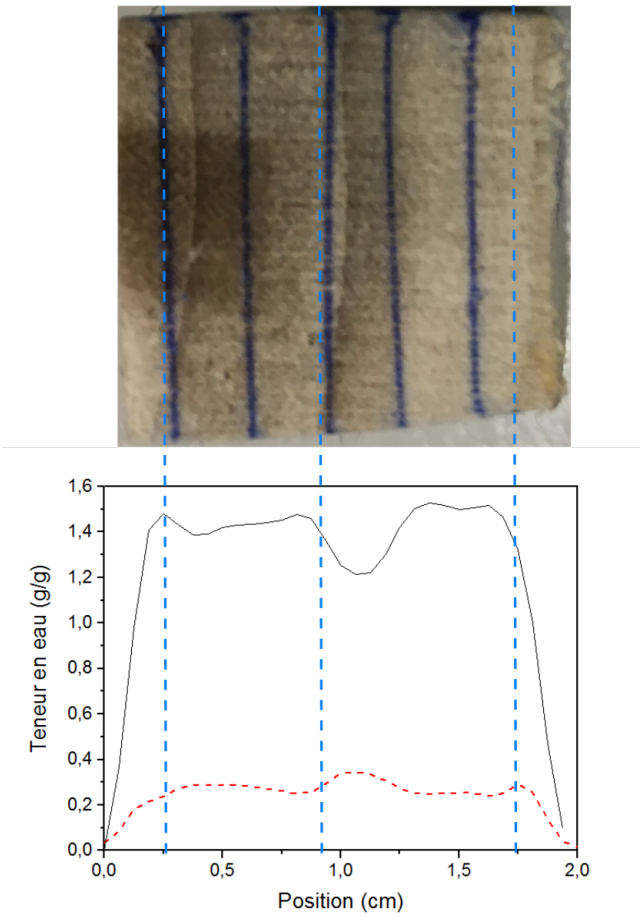


FIGURE 5.17 – Profils initiaux d'eau libre (ligne continue) et d'eau liée (ligne pointillée) pour le séchage dans la direction R. Une image de l'échantillon sur le plan RT montre la cohérence entre la forme des profils et les limites des cernes.

l'eau liée, on observe une tendance globalement similaire à celle dans la direction longitudinale : durant l'avancement du front sec d'eau libre, la fin de la zone saturée en eau liée progresse aussi dans l'échantillon. À partir de 200 h, lorsque toute eau libre est évaporée, l'eau liée commence enfin à diminuer sur toute la longueur de l'échantillon.

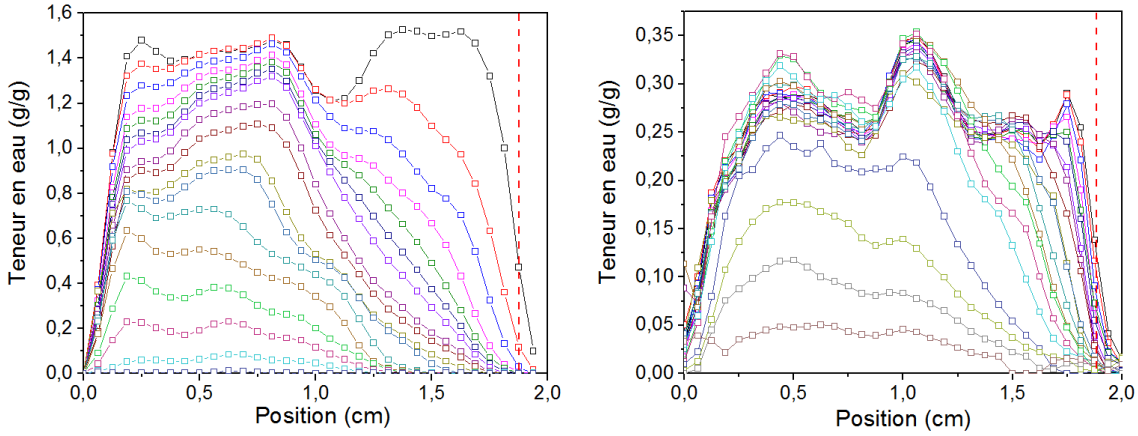


FIGURE 5.18 – Profils d'eau libre (**gauche**) et d'eau liée (**droite**) pendant le séchage dans la direction R. La ligne rouge pointillée montre la position de la surface libre. Les profils sont présentés à différents moments : 0, 2, 4, 8, 12, 16, 20, 30, 40, 50, 60, 80, 100, 125, 150, 175 et 200 h. Comme à partir de 200 h il ne reste plus d'eau libre mais il y a encore d'eau liée, trois profils à 210, 220 et 233 h sont présentés pour l'eau liée.

5.3.2.2 Direction tangentielle

Les distributions d'eau dans la direction tangentielle sont maintenant présentées sur la Fig.5.19. De manière générale, la forme des profils d'eau liée et d'eau libre est plus homogène suivant la direction tangentielle où on ne voit pas la différence au sens du cerne. On observe cependant une légère augmentation d'eau libre vers 2 cm, qui pourrait s'expliquer par la courbure des cernes.

Les profils d'eau libre sur la Fig.5.19 à gauche nous permettent de distinguer deux régimes : dans le premier régime ($t \leq 100$ h) on n'observe que l'avancement du front sec alors que la teneur en eau dans la partie inférieure de l'échantillon reste contant, comme si le séchage s'effectuait couche par couche. Puis, après 100 h on observe enfin la diminution de teneur en eau en bas de l'échantillon. Le résultat confirme que l'écoulement tangentiel est très limité par rapport aux deux autres directions, ce qui provient probablement de l'absence de cellules orientées dans la direction tangentielle. À la fin de l'expérience à 250 h, il reste encore beaucoup d'eau libre dans la partie basse de l'échantillon sur 1 cm. Quant à l'eau liée, on ne constate que la formation et la progression de la zone du gradient d'eau liée. Le bas de l'échantillon reste saturé en eau liée après l'arrêt de l'expérience.

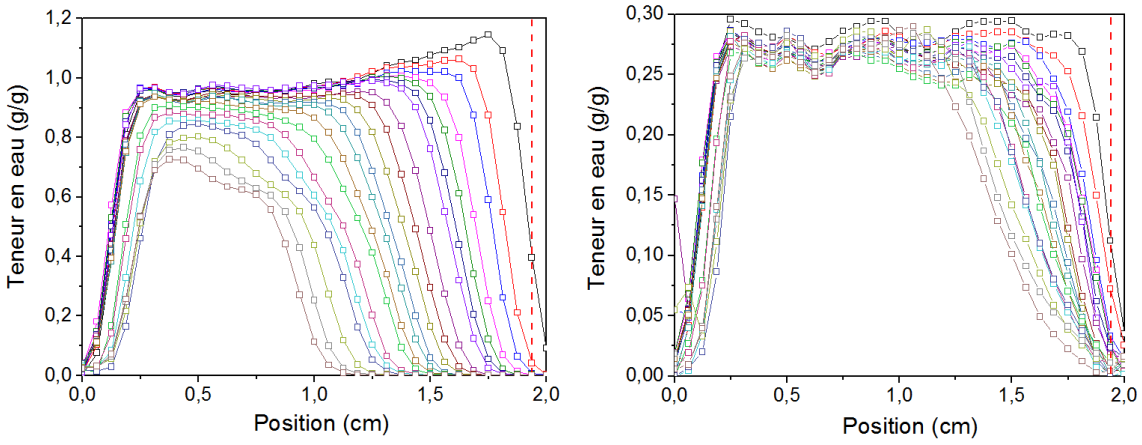


FIGURE 5.19 – Profils d'eau libre (**gauche**) et d'eau liée (**droite**) pendant le séchage dans la direction T. La ligne rouge verticale montre la position de la surface libre. Les profils sont présentés à différents temps : 0, 2, 4, 8, 12, 16, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 100, 125, 150, 175, 200, 225 et 250 h.

5.3.3 Discussion

Nous avons vu dans cette partie que le séchage dans les directions transversales est beaucoup plus lent par rapport au séchage dans la direction longitudinale, et l'échantillon sèche encore plus lentement dans la direction tangentielle. Ces différences sont étroitement liées à l'anisotropie de la structure du bois. Dans la direction longitudinale, dans les vaisseaux qui servent de passages ouverts, la vapeur d'eau peut diffuser plus efficacement pour sortir du système. De plus, l'écoulement capillaire permet d'aspirer l'eau libre du fond vers le haut, ce qui facilite l'évaporation. Au contraire, pour le séchage dans les directions transversales, l'orientation des fibres et des vaisseaux a deux conséquences principales : (i) la vapeur d'eau doit diffuser à travers des parois, ce qui réduit le coefficient de diffusion apparent au même ordre de grandeur de celui d'eau liée ($10^{-9}\ m^2/s$) ; (ii) l'eau libre doit aussi traverser les parois, soit via les rayons ligneux (dans la direction radiale) soit via les ponctuations (dans la direction tangentielle). Nous avons vu précédemment que, lorsque $V_{cap} \ll V_e$, le front sec se développe et progresse dans le milieu. Le faible écoulement dans les directions tangentielles pourrait alors expliquer le développement rapide du front sec, qui induit dès le début la diminution du taux de séchage (voir Fig.5.16). Puis, pour la direction radiale, l'écoulement de liquide est plus efficace en raison de la présence des rayons ligneux. Pour vérifier l'impact des rayons ligneux, nous avons tracé la position du front sec d'eau libre en fonction de la teneur en eau sur la Fig.5.20. On remarque que le front sec progresse plus rapidement avec la diminution de teneur en eau dans la direction tangentielle. Plus précisément, pour la même teneur en eau, l'eau doit diffuser sur une distance plus grande dans la direction tangentielle, ce qui induit alors un taux de séchage plus faible que dans la direction radiale.

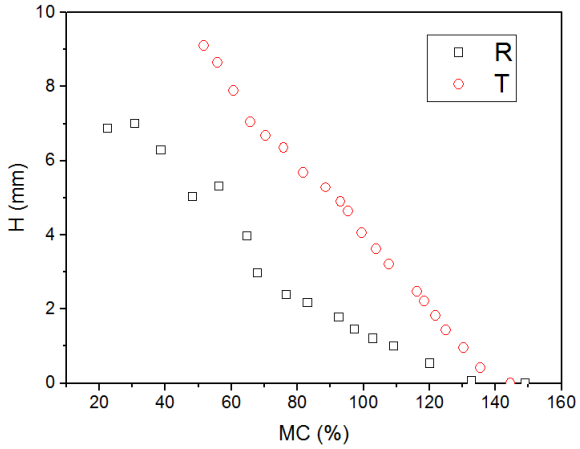


FIGURE 5.20 – Position du front d'eau libre en fonction de la teneur en eau dans l'échantillon. En noir : direction radiale ; en rouge : direction tangentielle.

5.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié le séchage du peuplier dans les trois directions à l'aide de l'IRM, qui se révèle être une technique pratique pour étudier les transferts d'eau dans le bois. Nos travaux dans ce chapitre nous permettent de montrer les mécanismes essentiels pour le séchage du bois. La structure anisotrope du bois doit être bien prise en compte pour expliquer les différents comportements selon la direction.

Le séchage longitudinal est globalement similaire au séchage d'un milieu poreux modèle : on observe d'abord un premier régime à vitesse constante puis le deuxième régime à taux de séchage décroissant. L'observation de la désaturation homogène dans le cas de l'eau libre comme dans le cas du dodécane montre que les vaisseaux ne peuvent pas être considérés comme des cylindres simples, et les irrégularités sur les parois cellulaires induisent une accroche (pinning) des lignes de contact. La mesure du front sec montre que la dynamique de séchage est contrôlée par la diffusion à partir des interfaces eau-air.

Le séchage dans les directions transversales s'avère beaucoup plus lent que dans la direction longitudinale. Ceci pourrait être expliqué par un coefficient de diffusion apparent réduit par la diffusion d'eau liée nécessaire pour atteindre la surface libre dans les parois, et par l'écoulement du liquide dans le plan transverse. Nous avons aussi pu montrer que le séchage dans la direction radiale est plus efficace que dans la direction tangentielle, grâce à la présence des rayons ligneux.

5.5 Références

KEITA, E., S. A. KOEHLER, P. FAURE, D. A. WEITZ et P. COUSSOT. 2016, «Drying kinetics driven by the shape of the air/water interface in a capillary channel», *European Physical Journal E*, vol. 39, nº 2, doi :10.1140/epje/i2016-16023-8, p. 1–10, ISSN 1292895X. 191

SIAU, J. 1984, *Transport process in wood*, Springer-Verlag, New York, ISBN 978-3-642-69213-0. 203

WIBERG, P. et T. J. MOREN. 1999, «Moisture flux determination in wood during drying above fibre saturation point using CT-scanning and digital image processing», *Holz Als Roh-Und Werkstoff*, vol. 57, n° 2, doi :10.1007/s001070050029, p. 137–144, ISSN 0018-3768. 203

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

Au cours de ces travaux de thèse, nous avons étudié l'imbibition et le séchage du bois, en prenant en compte les différents états de l'eau dans le bois. Notre démarche a d'abord consisté à montrer l'incohérence entre les résultats d'imbibition dans le bois et les prédictions théoriques de montée capillaire dans un milieu poreux rigide de caractéristiques proches de celles déduites des observations de la structure du bois. Nous avons ensuite analysé le processus d'imbibition au sein du matériau à l'aide de l'IRM et de la tomographie aux rayons X. Les deux techniques nous ont permis d'avoir une vision interne et dynamique du phénomène, et finalement de proposer un modèle pour décrire les mécanismes mis en jeu. Pour confirmer notre compréhension des phénomènes nous avons alors étudié l'imbibition d'un milieu poreux modèle à base d'hydrogel. Pour finir, nous nous sommes intéressés au séchage du bois via des observations par IRM.

Une revue bibliographie détaillée a été présentée au début de ce manuscrit afin de 1) fournir les concepts physiques fondamentaux pour les transferts d'eau dans un milieu poreux, et 2) présenter la structure complexe du bois et l'interaction eau-bois. Cette synthèse a montré que les feuillus, composés essentiellement de vaisseaux et de fibres, ont l'avantage de pouvoir être considérés comme une série de tubes capillaires parallèles par rapport aux résineux, qui présentent un système hydraulique plus complexe. Il a été aussi montré que, bien qu'elle ne soit en général pas prise en compte dans les modèles décrivant les transferts d'eau liquide (eau libre) dans le bois, l'eau liée pourrait jouer un rôle important. Une compréhension plus approfondie du couplage eau liée/eau libre et de la cinétique de pénétration pour les deux types d'eau apparaissant donc essentielle.

Dans le chapitre 3, nous avons étudié l'imbibition dans les feuillus avec deux types de liquides : l'eau et des huiles de silicone. Il a été montré par des mesures macroscopiques que la cinétique de pénétration de l'eau dans le bois est de plusieurs ordres de grandeur plus lente que la prédiction théorique s'appuyant sur le modèle de Washburn basé sur des considérations bien établies en mécanique des fluides. Une contradiction a été mise en valeur entre une dynamique de pénétration lente, qui suggère un mauvais mouillage, et la hauteur finale atteinte par l'eau, qui laisse supposer plutôt un bon mouillage. Cependant, une bonne cohérence des résultats d'imbibition avec les prédictions théoriques a été observée pour des huiles de silicone. Ceci suggère qu'il existe un effet particulier se produisant avec l'eau au cours de l'imbibition. La dynamique d'imbibition avec l'eau ne semble pas être dominée par les effets capillaires (avec un mouillage fixé). Nous avons

ensuite réalisé des mesures de déformation dont les résultats ont révélé la progression rapide de l'eau liée à travers l'échantillon au cours de l'imbibition

En nous appuyant sur le fait que des mesures de temps de relaxation permettent d'identifier l'eau dans différents états, une séquence IRM multi-écho a été développée pour suivre les distributions d'eau liée et d'eau libre au sein de l'échantillon dans la direction d'imbibition. Nous avons alors pu montrer que le processus d'imbibition avec l'eau dans le bois est contrôlé par l'adsorption et la diffusion de l'eau liée dans les parois cellulaires. Lorsque le bois est mis en contact avec de l'eau, l'eau liée est absorbée dans les parois, puis elle diffuse sous action du gradient de concentration d'eau liée dans les parois. Une fois que les parois sont saturées en eau liée, l'eau libre peut progresser dans les lumens au contact de ces parois. La position du front d'eau libre est imposée par le bord supérieur de la zone saturée en eau liée. Le couplage entre l'eau liée et l'eau libre a ainsi été mis en évidence.

Nous avons ensuite cherché à comprendre le "moteur" de la pénétration de l'eau libre. À l'aide de la tomographie aux rayons X synchrotron, nous avons réalisé des observations fines au niveau des interfaces eau-air dans les vaisseaux. En comparant les formes des interfaces eau-air dans différentes zones d'un même échantillon au cours de l'imbibition, on en déduit que, lorsque les parois sont saturées en eau liée, l'eau mouille bien les parois et nous avons des effets capillaires associés à un petit angle de contact. Au contraire, tant que les parois ne sont pas saturées, l'adsorption d'eau liée dans les parois modifie significativement la forme de l'interface eau-air, les effets capillaires sont négligeables. L'observation de l'avancée des interfaces planes confirme le couplage des deux états de l'eau. Par ailleurs, la répartition de l'huile de silicone dans le bois confirme que la conduction de liquide est assurée par les vaisseaux qui peuvent être considérés comme des tubes cylindriques chez les feuillus. Le transfert entre vaisseaux et fibres à travers des ponctuations est négligeable. A noter enfin que la présence de l'huile de silicone est limitée dans les vaisseaux, alors que l'eau peut atteindre les fibres via la diffusion d'eau liée dans les parois.

Au chapitre 4, nous avons réalisé des tests d'imbibition avec un « bois artificiel » : un canal capillaire entouré par une paroi à base d'hydrogel. Selon la teneur en eau initiale dans la paroi d'hydrogel, nous avons observé différentes dynamiques d'imbibition : pour un hydrogel saturé, la cinétique de montée capillaire observée dans le canal présente un facteur 0,3 par rapport à la prédiction de la loi de Washburn. Ceci pourrait être expliqué par la déformation locale de la paroi molle au niveau de la ligne de contact. En revanche, les observations avec un hydrogel déshydraté sont similaires à celles obtenues au cours de l'imbibition dans le bois avec de l'eau : la montée de l'interface eau-air dans le capillaire est significativement ralentie, avec un angle de contact apparent proche de 90°. Si l'interface eau-air recule dans la zone déjà imbibée, elle retrouve une forme de ménisque avec un petit angle de contact. Par ailleurs, un front de déformation est observé dans la paroi d'hydrogel, qui progresse légèrement devant l'interface eau-air dans le capillaire. Les résultats obtenus nous permettent d'en déduire qu'il s'agit d'un phénomène mathématiquement similaire au problème de la glace fondante. L'idée fondamentale est que dans un tel milieu poreux déformable et absorbant, la diffusion dans la phase solide (la paroi) détermine la dynamique de montée du liquide dans les pores, par modification des

conditions de mouillage.

Au chapitre 5, nous nous sommes intéressés au séchage du bois. La séquence IRM développée dans les chapitres précédents nous a permis d'étudier séparément la dynamique de séchage pour l'eau liée et l'eau libre. Dans la direction longitudinale, les profils IRM révèlent une désaturation homogène durant le séchage pour un échantillon initialement saturé en dodécane. Ceci implique que les vaisseaux ne peuvent pas être considérés comme de simples tubes cylindriques. Des effets capillaires adaptés dans les vaisseaux permettent probablement un écoulement du fluide le long des vaisseaux par accroche de films liquides sur des irrégularités de parois. Dans le cas du séchage du bois initialement saturé en eau, les observations par IRM sont similaires à celles obtenues avec un milieu poreux granulaire. Un premier régime à vitesse constante est assuré par l'évaporation d'eau à partir de la surface libre. Puis l'entrée d'un front sec d'eau libre correspond au début du deuxième régime à la vitesse de séchage décroissante. Les mesures de la position du front sec durant ce deuxième régime ont montré un bon accord avec la décroissance du taux de séchage. L'eau libre s'écoule dans le milieu pour s'évaporer à partir de l'interface eau/air puis diffuser à travers la zone sèche (en eau libre). Quant à l'eau liée, sa diminution est négligeable lorsqu'il reste encore de l'eau libre, et elle ne devient significative qu' à partir de la disparition totale de l'eau libre dans l'échantillon.

Dans les directions transversales, la vitesse de séchage est significativement ralentie et diminue dès le début du séchage. Comme l'écoulement de liquide est limité dans le plan transverse, un front sec pénètre rapidement dans l'échantillon, augmentant la distance de diffusion de vapeur d'eau. La diffusion de vapeur eau est elle-même limitée par les parois dans le plan transverse. Dans la direction radiale, selon laquelle des rayons ligneux peuvent transporter du liquide, le séchage est plus rapide par rapport à celui selon la direction tangentielle.

Perspectives

Plusieurs directions de recherche peuvent être envisagées suite à ces travaux, soit pour poursuivre l'étude des transferts d'eau dans le matériau bois, soit pour envisager des applications des propriétés des hydrogels.

Il serait d'abord intéressant de réaliser les cycles absorption/désorption à différentes humidités pour compléter le modèle de diffusion de l'eau liée dans les parois. Ces informations nous permettront de mieux comprendre la dynamique de transfert d'eau liée au cours d'un cycle imbibition/séchage. Pour le séchage de feuillus nous ignorons comment les fibres sèchent et s'il existe des transferts entre vaisseaux et fibres. Il pourrait être intéressant d'étudier la répartition d'eau dans les différents éléments de structure ainsi que la forme des interfaces eau-air au sein de l'échantillon par microtomographie aux rayons X. Il serait également nécessaire d'améliorer le modèle de séchage qui, pour l'instant, reste très simplifié et ne prend pas en compte complètement la structure complexe du bois. Par ailleurs, comme notre étude s'est focalisée sur le séchage de l'eau libre aux teneurs en eau élevées, il serait utile d'étudier la dynamique de séchage dans le domaine hygroscopique.

Comme nous disposons maintenant d'une première compréhension des mécanismes de transferts d'eau dans les feuillus, il faudrait étudier la pertinence des mécanismes mis en jeu avec les résineux.

Au chapitre 4 nous avons proposé un modèle basé sur des conditions simplifiées pour le phénomène d'imbibition dans un milieu poreux modèle à base d'hydrogel. Par exemple nous avons supposé un coefficient de diffusion D indépendant de la teneur en eau dans l'hydrogel et une densité d'hydrogel constante. De plus, nous ignorons les valeurs critiques de teneur en eau (C_f et C_x) ni les réponses mécaniques du gel face à l'absorption d'eau. Nous pouvons alors envisager plusieurs pistes pour les futurs travaux afin de mieux comprendre ce phénomène et améliorer le modèle actuel. D'abord il sera intéressant de connaitre l'isotherme d'adsorption de l'hydrogel, pour mieux étudier l'impact de la vapeur d'eau sur l'imbibition. Ensuite, nous pouvons faire varier la teneur en eau initiale C_∞ à forte humidité, par exemple en stabilisant les échantillons à 97, 98, 99 % HR, pour approcher C_∞ à la valeur critique de teneur en eau C_f. On pourrait également fabriquer des échantillons avec des capillaires plus longs pour étudier l'impact de la gravité. Par ailleurs, notre étude sur la diffusion dans la paroi reste très qualitative et nous n'avons pas été capable d'obtenir des mesures plus précises. Nous pourrions donc envisager des essais avec des solutions colorées ou fluorescentes pour tracer la diffusion d'eau dans l'hydrogel. Enfin, on pourrait travailler sur l'influence des propriétés mécaniques de l'hydrogel sur la dynamique d'imbibition.

Dans l'étude des hydrogels un paramètre que nous n'avons pas fait varier mais qui pourrait avoir une influence importante sur la diffusion est l'épaisseur de la paroi. Bien que nous ayons testé plusieurs diamètres de capillaires, la paroi d'hydrogel reste épaisse par rapport au diamètre de canal et elle est capable d'absorber beaucoup d'eau. On pourrait alors envisager qu'avec de petites épaisseurs, la paroi peut être saturée rapidement au contact de l'eau. Nous obtiendrions probablement une dynamique de montée qui augmente lorsque l'épaisseur de paroi diminue. Un autre aspect intéressant serait de réaliser des structures complexes plus proches de la structure réelle du bois. Des bulles confinées dans l'hydrogel, si elles sont initialement vides, ont un aspect similaire aux fibres. Si on fabrique des bulles confinées vides autours d'un capillaire, on peut alors se demander ce qui va se passer pendant l'imbibition. Est-ce que les bulles vides vont se remplir d'eau liquide progressivement via la diffusion dans le réseau, comme ce que nous avons observé dans les fibres ?

Nous pouvons aussi élargir les perspectives à plus long terme. Même si l'idée d'utiliser l'hydrogel a initialement pour but de comprendre les transferts d'eau dans le bois, les applications déjà existantes avec les hydrogels dans les domaines de la biologie ou la médecine nous permettent de penser à des perspectives prometteuses. En jouant avec les degrés d'hydratation de la paroi, nous pourrions contrôler la dynamique de l'imbibition dans des microcanaux avec des vitesses variables. Des systèmes de transport avec un timing adaptable pourraient être conçus pour l'application dans des domaines d'intérêt.

Compréhension des mécanismes de transferts d'eau dans le bois

Le bois possède des propriétés physiques remarquables mais qui dépendent étroitement du taux d'humidité dans le matériau. Du fait de sa structure multi-échelle et des différents états de l'eau dans le bois, les mécanismes de transferts d'eau dans le bois sont encore mal appréhendés. Nous étudions les phénomènes physiques essentiels à l'origine des propriétés d'imbibition et de séchage du bois de feuillu. On montre d'abord par des expériences macroscopiques classiques, que la dynamique d'imbibition d'eau dans le bois est significativement ralentie (plusieurs ordres de grandeur) par rapport aux prédictions du modèle de Washburn utilisant la perméabilité et la mouillabilité du bois mesurées indépendamment. Les distributions d'eau liée et d'eau libre obtenues par IRM au cours de l'imbibition montrent que l'eau liée adsorbée dans les parois cellulaires progresse en fait (par diffusion) plus vite que l'eau libre dans les pores. Il faut attendre que les parois soient saturées en eau liée pour que l'eau libre avance à son tour dans les lumens du bois. L'analyse des images tomographiques aux rayons X suggèrent que le ralentissement de la pénétration d'eau liquide dans le bois est dû à la modification des conditions de mouillage par la teneur en eau liée dans les parois. Les expériences d'imbibition avec un « bois artificiel » à base d'hydrogel confirment cette hypothèse. Finalement, l'étude du séchage du bois par IRM montre également différentes dynamiques de séchage pour l'eau liée et l'eau libre. Le séchage du bois est contrôlé par l'évaporation d'eau libre à partir d'un front sec à des teneurs en eau élevées. L'évaporation d'eau liée ne devient significative qu'à partir de la disparition totale de l'eau libre.

Mots clés : transferts d'eau, bois, milieu poreux, imbibition, séchage, IRM, tomographie aux rayons X

Study of water transfers mechanisms in wood

Wood has excellent physical properties which however depend closely on the moisture content in the material. Because of its multi-scale structure and different states of water existing in the material, the mechanisms of water transfers in wood are still poorly understood. The essential phenomena at the origin of imbibition/drying properties of hardwood are studied in this thesis. We first show with classical macroscopic measurements that, water imbibition in wood is significantly damped compared to Washburn's law which predicts the dynamic of capillary imbibition in the porous medium. The bound water and free water distributions obtained by MRI during imbibition show that, the bound water adsorbed in cell walls diffuses more quickly than the free water located in the pores. Free water cannot penetrate in the pores unless the cell walls have been saturated with bound water. The tomographic image analysis reveals that the damped dynamic of liquid water penetration in wood is due to the modification of wetting conditions by bound water content in the cell walls. Imbibition Tests with a hydrogel-based "artificial wood" confirm our hypothesis. Finally, the observations of wood drying by MRI show also different drying dynamics for bound and free water. At high moisture content, wood drying is controlled by the evaporation of free water from a dry front. The bound water starts to evaporate significantly only after the total disappearance of free water.

Key words : water transfers, wood, porous medium, imbibition, drying, MRI, X-ray tomography