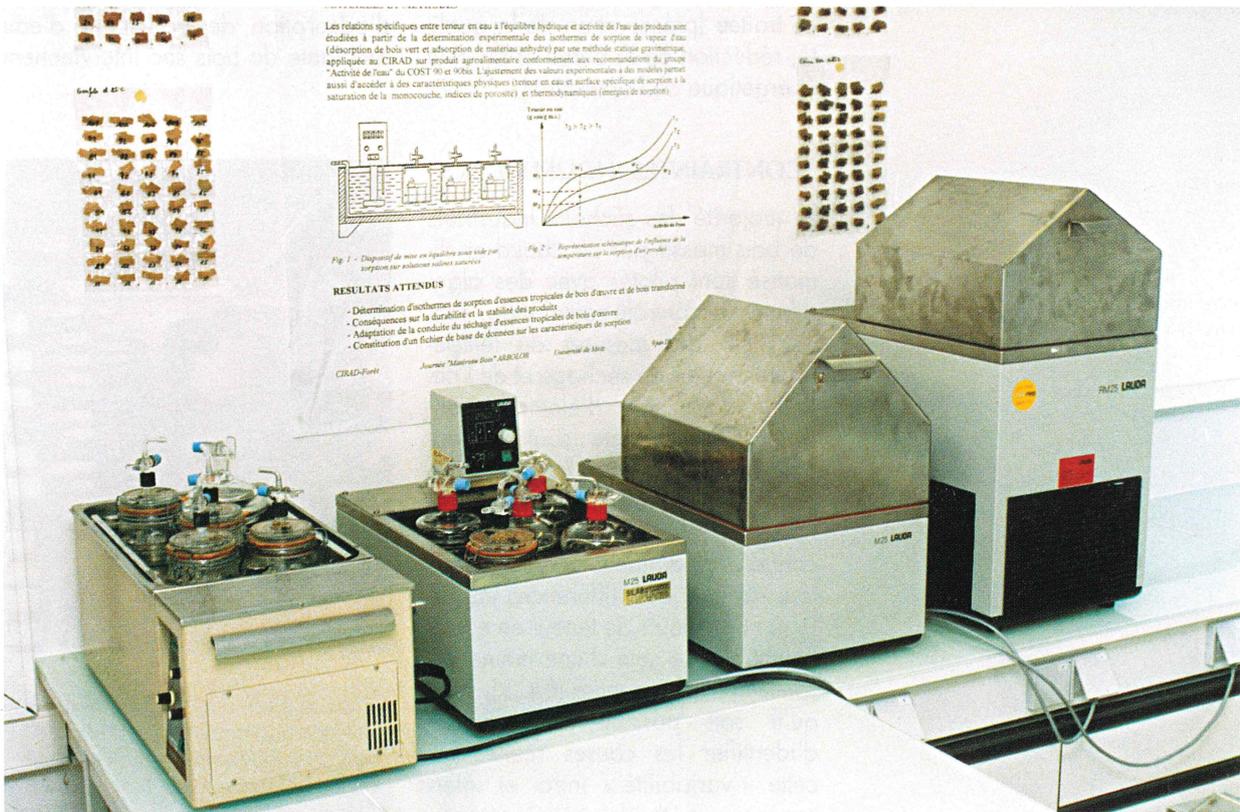


ANDRÉ THEMELIN  
CIRAD-Forêt

# COMPORTEMENT EN SORPTION DE PRODUITS LIGNO-CELLULOSIQUES



Banc de sorption à usage partagé et mis en place à la Maison de la Technologie du CIRAD à Montpellier.  
*Sorption test bed for shared use set up in the CIRAD Maison de la Technologie at Montpellier.*

Cette synthèse fait le point sur le comportement en sorption de la vapeur d'eau des bois tropicaux et de leurs dérivés.

Elle décrit une méthode capable de déterminer leur stabilité en service et la conduite de leur séchage.

Les forêts tropicales produisent une diversité de plus en plus grande de produits, due aussi bien à l'augmentation des essences en provenance de la forêt naturelle qu'à la disponibilité croissante des produits de plantations. Une meilleure connaissance des relations spécifiques entre teneur en eau à l'équilibre du matériau bois et ses conditions de service ou de procédé est primordiale à double titre :

- pour déterminer précisément les caractéristiques des produits finis en fonction de leurs utilisations et de leurs conditions de service (réduction des pertes de matière, stabilités microbiologique et dimensionnelle du bois d'œuvre et du bois transformé) ;
- pour adapter, voire optimiser la conduite de procédés tels que le séchage, au comportement de l'essence traitée (préservation de la qualité, réduction de la durée et du coût énergétique de l'opération).

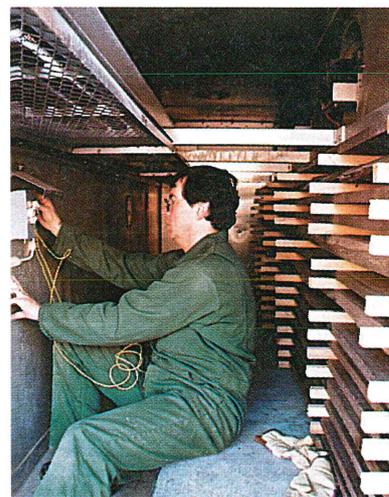
### CONTRAINTES INDUSTRIELLES

La majorité des séchoirs industriels de bois massif par air chaud et climatisé sont pilotés avec des algorithmes de contrôle-commande, fondés sur des mesures de température de l'air de séchage et de l'humidité d'équilibre d'éléments sensibles. Ces derniers sont susceptibles de reproduire fidèlement le comportement en (dé)sorption de l'essence traitée (cf. photo ci-contre). Les données acquises à ce jour révèlent des différences importantes de valeurs de teneur en eau à l'équilibre au sein d'une même essence et entre essences (fig. 1), sans qu'il soit possible actuellement d'identifier les causes réelles de cette « variabilité » intra- et inter-espèces : méthodes, équipements, qualité des mesures, état initial et variabilité de l'échantillonnage (THEMELIN, VERGNET, 1997). De plus,

les différentes tables de séchage et leurs segments constitutifs se distinguent les uns des autres par des écarts de consigne d'humidité d'équilibre du bois de quelques p. 100 (taux d'humidité exprimé en % base sèche, équivalent à la teneur en eau exprimée en gramme d'eau pour 100 g de bois anhydre) ; la recherche de conditions de séchage adaptées, voire optimisées, d'une essence particulière impose de bien connaître les états d'équilibre vers lesquels on fait tendre successivement cette essence au cours du séchage, ainsi que les éléments sensibles des capteurs de contrôle.

## CADRE DE L'ÉTUDE

Les phénomènes de désorption de l'eau du bois humide (séchage) ou d'adsorption de la vapeur d'eau ambiante du bois sec interviennent



Mise en place d'un élément sensible de capteur d'humidité d'équilibre du bois sur le boîtier de contrôle d'un séchoir par air chaud et climatisé.

*Setting up of a sensitive element of wood equilibrium moisture content sensor on the control case of a wood dryer.*

de façon prépondérante dans le comportement du matériau bois en service (durabilité, préservation et stabilité dimensionnelle), lors de son conditionnement (séchage) et de sa transformation (collage et finition). Les transferts d'eau entre le bois et son environnement, observés au cours du séchage et du stockage, sont dépendants de la composition et de la structure associée du matériau : à la fois par l'état d'équilibre vers lequel tend le produit (teneur en eau à l'équilibre par sorption) et par la vitesse avec laquelle il tend ou il atteint cet état d'équilibre (cinétique d'élimination ou de reprise d'eau).

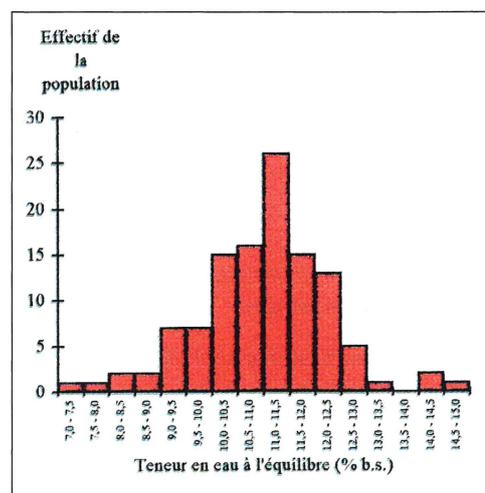
Pour répondre à des demandes émanant de projets en cours, on a adapté puis développé une méthode pour caractériser le comportement en sorption des produits lignocellulosiques ; cette méthode sert aussi à établir les isothermes de sorption de produits agro-alimentaires. Elle consiste à déterminer expérimentalement les teneurs en eau à l'équilibre de divers produits pour des températures comprises entre 20 et 100 °C. Cette action bénéficie de l'expérience acquise au CIRAD sur la détermination expérimentale (méthode, équipement, traitement des résultats) des isothermes de sorption (THEMELIN, VERGNET, 1997), cf. photo p. 55.

Nous nous intéresserons ici à la connaissance des états d'équilibre de produits lignocellulosiques tels que le bois d'œuvre, le bois torréfié et certains éléments hygroscopiques de capteurs de l'industrie du bois.

## MÉTHODOLOGIE

La stabilité des produits biologiques est directement liée à la « disponibilité » physico-chimique de l'eau pour les différentes réactions de dégradation que peut subir le produit (attaque des micro-organismes, ré-

Figure 1. Distribution des teneurs en eau à l'équilibre à 23 °C et 65 % H.R. de 114 essences tropicales (C.T.F.T., 1960-1990).  
*Distribution of equilibrium moisture content at 23 °C and 65 % R.H. of 114 tropical wood species (C.T.F.T., 1960-1990).*



actions chimiques enzymatiques et non enzymatiques) (BIMBENET, LONCIN, 1995). Cette disponibilité est appréciée au travers de l'activité de l'eau ( $a_w$ ) du produit considéré, qui est mesurée par l'humidité relative d'une atmosphère en équilibre thermodynamique avec le produit ; la valeur d' $a_w$  est alors exprimée sans unité en divisant la valeur d'humidité relative d'équilibre par 100. Divers procédés sont utilisés afin de stabiliser un produit biologique pour sa conservation et/ou sa transformation ultérieure en réduisant son activité de l'eau ; le séchage permet d'enlever la fraction facilement mobilisable de l'eau.

La détermination expérimentale des isothermes de sorption consiste à maintenir un échantillon de bois, à l'état vert ou à l'état anhydre, sous une pression partielle de vapeur d'eau à une température fixée jusqu'à l'obtention de l'équilibre thermodynamique, respectivement par désorption ou par adsorption. Cet équilibre est atteint lorsqu'aucune variation significative de masse de l'échantillon n'est observée. Nous utilisons ici une méthode statique gravimétrique suivant les recommandations du groupe « Activi-

té de l'eau » du COST 90\* (SPIESS, WOLF, 1987) et la certification B.C.R.\*\* (JOWITT, WAGSTAFFE, 1989). L'adaptation et la validation de cette méthode sur produit lignocellulosique ont été réalisées par THEMELIN et VERGNET (1997) et par THEMELIN *et al.* (1997).

Chaque isotherme de sorption (désorption ou adsorption) est construite à partir de dix points d'équilibre déterminés par les pressions partielles de vapeur ou, plus couramment, par les humidités relatives d'équilibre ou activités de l'eau ( $a_w$ ) de dix solutions salines saturées, pour une température donnée.

## DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

Le banc de sorption utilisé est constitué d'un dispositif comprenant au total quatre bacs thermostatés (bains-marie à circulation d'eau, fermés et entièrement isolés), chaque bac accueillant un ensemble de cinq flacons de point d'équilibre déterminé (cf. photo p. 55). Le dispositif

\* European Cooperation in the field of Scientific and Technical Research.

\*\* Community Bureau of Reference.

complet autorise ainsi la réalisation simultanée de 20 points d'équilibre, soit la détermination en parallèle de deux isothermes sur une gamme de température de 20 à 100 °C et de 0 à 1 d' $a_w$  (soit 0 à 100 % d'humidité relative). Les cycles de sorption sont réalisés sous vide partiel afin de diminuer la durée d'atteinte de l'équilibre thermodynamique.

Les bacs thermostatés sont régulés avec une précision de  $\pm 0,2$  °C en température. Les recommandations du COST 90 permettent de maintenir des conditions strictement homogènes en température et en humidité relative de l'air confiné au voisinage des échantillons mis en place, homogénéité indispensable pour garantir l'équilibre thermodynamique.

### DÉROULEMENT DES ESSAIS

Nous présentons ici les applications développées sur quatre types de produits ligno-cellulosiques :

- Bois d'œuvre à partir de billons en provenance, d'une part, de la forêt naturelle guyanaise : Angélique (*Dicorynia guianensis*) mis à disposition par le CIRAD-Forêt de Guyane (THEMELIN *et al.*, 1996) et, d'autre part, en provenance du Cameroun grâce à la participation d'un importateur français du port de Sète : Iroko (*Milicia excelsa* et/ou *regia*).
- Bois d'œuvre à partir de bois de plantation d'Eucalyptus en Uruguay (*Eucalyptus grandis*), afin de mieux appréhender le comportement en désorption et conduire le séchage de cette essence (THEMELIN *et al.*, 1997).
- Bois torréfié, dans le cadre de travaux sur l'amélioration de la durabilité naturelle du bois, pour évaluer l'influence de la torréfaction sur son hygroscopicité.

- Deux types d'éléments sensibles de capteurs industriels actuellement commercialisés, utilisés couramment dans les régulations de séchoirs (THEMELIN *et al.*, 1997).

□ **Les essais sur l'Angélique** portent sur des prélèvements à 3 m de hauteur de billes de pied (diamètres compris entre 0,40 m et 0,58 m) de dix individus prélevés sur le site d'Organabo en Guyane française.

□ **Les essais sur l'Iroko** sont réalisés sur des prélèvements à mi-hauteur de billes de 12 m de longueur (diamètres compris entre 0,60 m et 0,70 m) de cinq individus.

□ **Les essais sur l'Eucalyptus** portent sur des prélèvements à mi-hauteur de fûts de 20 m de longueur exploitable (diamètres compris entre 0,24 m et 0,37 m) de cinq individus prélevés sur une plantation de 13 ans d'âge située dans le nord de l'Uruguay.

□ Enfin, **on compare deux types d'éléments sensibles de capteurs de mesure** par résistivité électrique proposés par deux constructeurs d'équipement afin d'apprécier leur capacité à reproduire le comportement en sorption des bois tropicaux (à l'équilibre, donc sans influence du temps de réponse de l'élément sensible et de la chaîne de mesure).

### CONDITIONNEMENT DES PRODUITS

Les prélèvements sur grumes ou billons sont réalisés à partir de sections tronçonnées en rondelles d'épaisseur de 6 à 10 cm. Selon la durée de stockage (quelques heures ou quelques jours), elles sont conservées à l'état frais, soit par humidification superficielle et enrobage sous film plastique étirable, soit revêtues de produit anti-fente et immergées dans l'eau à température ambiante. Les essais antérieurs sur plusieurs espèces de forêt naturelle

n'ont pas montré de variabilité du comportement en sorption dans le sens radial (THEMELIN *et al.*, 1996 ; THEMELIN, VERGNET, 1997) ; les prélèvements sont effectués sur la section duraminisée de l'Angélique et de l'Iroko, sur toute la section (cœur et aubier) de l'Eucalyptus à partir d'un diamètre de 10 cm. Chaque section ou rondelle est alors déroulée à l'état vert et à température ambiante sur une minidérouleuse (au Laboratoire de Mécanique et de Génie Civil de l'Université de Montpellier II) en placages de 1 mm d'épaisseur et de 6 à 10 cm de largeur. Les placages sont alors débités en lamelles de 10 mm de largeur, sur une profondeur de 6 à 10 cm, au centre desquelles sont extraites des plaquettes-échantillons de 10 mm  $\times$  20 mm  $\times$  1 mm.

Après déroulage, des placages d'Eucalyptus sont séchés artificiellement à 30 °C et 12 % d'humidité d'équilibre pendant trois jours, puis stockés à température ambiante pendant deux mois avant d'être torréfiés à 220 °C sur la boucle de torréfaction du CIRAD-Forêt (GIRARD *et al.*, 1997).

Les éléments sensibles de capteurs d'humidité d'équilibre du bois (fibres de cellulose ou de bois conditionnées industriellement en plaquettes de 20 à 30 mm  $\times$  de 30 à 40 mm  $\times$  0,2 à 1 mm) sont utilisés par jeu de 50 individus par isotherme, chaque pèse-filtre accueillant un quart de plaquette.

Pour les expériences d'adsorption, l'état anhydre initial des échantillons est obtenu en disposant préalablement ces derniers dans un dessiccateur contenant du P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et mis sous vide pendant un mois à température ambiante.

### PROTOCOLE OPÉRATOIRE

Les plaquettes issues d'un même arbre sont choisies au hasard et regroupées par lot de quatre échan-

tilions disposé dans un même pèse-filtre. Chaque flacon pouvant accueillir cinq pèse-filtres, chaque point d'équilibre intègre cinq lots de plaquettes-échantillons provenant de cinq individus différents.

Après avoir vérifié que l'équilibre thermodynamique était atteint grâce à un suivi en parallèle de témoins (au bout de cinq à quinze jours entre 25 et 80 °C), les pèse-filtres sont fermés immédiatement après réouverture des flacons (rupture de l'équilibre) ; l'ensemble pèse-filtre-échantillon est alors pesé avant et après étuvage à 105 °C pendant 48 heures sur une balance de précision 0,1 mg.

Avant chaque série d'essais, on procède à un étalonnage préalable en réalisant une expérience d'adsorption à 25 °C de cellulose microcristalline (Avicel PH 101), produit de référence dont les teneurs en eau à l'équilibre ont été certifiées par un panel de dix laboratoires européens (JOWITT, WAGSTAFFE, 1989).

La teneur en eau à l'équilibre des échantillons de bois est alors calculée et exprimée en gramme d'eau pour 100 g de matière anhydre ou en p. 100 base sèche. L'évolution de la teneur en eau des échantillons en fonction de leur  $a_w$  peut être représentée au moyen de divers modèles (SIMPSON, 1973 ; KOPONEN, 1985 ; SKAAR, 1988 ; AVRAMIDIS, 1989 ; WANG, CHO, 1993 ; SIAU, 1995 ; AVRAMIDIS, 1997). Nous nous intéressons plus particulièrement au modèle de Dent développé sur les fibres textiles (DENT, 1977) qui s'identifie au modèle de G.A.B. (GUGGENHEIM, ANDERSON, DE BOER) développé sur les produits alimentaires (IGLESIAS, CHIRIFE, 1976 ; LABUZA *et al.*, 1985), dérivé du modèle B.E.T. (BRUNAUER, EMETT, TELLER). Ce modèle est, d'une part, bien adapté et précis pour décrire l'allure sigmoïde des isothermes de sorption de nombreux produits, notam-

ment alimentaires et, d'autre part, il donne une bonne représentation de l'influence de la température sur les isothermes de sorption (IGLESIAS, CHIRIFE, 1976 ; LABUZA *et al.*, 1985 ; AVRAMIDIS, 1997). L'expression de la teneur en eau d'un produit à l'équilibre thermodynamique en fonction de son activité de l'eau est une relation du type :

$$X = X_m \frac{Ck a_w}{(1 - k a_w) (1 - k a_w + Ck a_w)}$$

avec :

$X$  = teneur en eau à l'équilibre thermodynamique du produit (p. 100 base sèche).

$X_m$  = teneur en eau correspondante à l'occupation de tous les sites de sorption du produit par une couche monomoléculaire d'eau (p. 100 base sèche).

$C$  = coefficient appelé constante de Guggenheim

$k$  = facteur correctif relatif aux propriétés de sorption de la multicouche d'eau sur la monocouche d'eau déjà adsorbée sur le produit, avec en général  $k < 1$ .

Ces deux derniers coefficients, qui sont fonction de la température, permettent d'évaluer les énergies de sorption de l'eau sur la matrice solide du produit à partir de plusieurs isothermes réalisées à des températures différentes ( $n \geq 4$ ).

La limite d'hygroscopicité est la teneur en eau à l'équilibre du bois à la saturation de tous ses sites de sorption par une couche multimoléculaire d'eau juste avant condensation capillaire. Elle correspond à ce qu'on appelle communément le point de saturation des fibres.

L'ajustement des modèles aux valeurs expérimentales de teneur en eau à l'équilibre est réalisé par régression non linéaire à l'aide de l'algorithme du simplex (Systat 5.03, 1991), algorithme approprié de par

sa très faible sensibilité aux estimations initiales des paramètres à déterminer. La qualité de l'ajustement est appréciée par la distribution des points expérimentaux par rapport aux courbes des modèles tracées sur Excel, les pourcentages de variance expliquée par les modèles, la valeur et la distribution des résidus.

## RÉSULTATS ET DISCUSSION

### COMPORTEMENT EN SORPTION D'ESSENCES DE FORÊT NATURELLE ET DE PLANTATION

L'étude du comportement en sorption du bois révèle tout d'abord une très faible variabilité intra-espèce, comme l'illustrent les figures 2 et 3, p. 60, qui intègrent valeurs expérimentales et modèles d'ajustement. Les teneurs en eau à l'équilibre sont très centrées sur leurs moyennes, avec de faibles coefficients moyens de variation entre 25 et 80 °C : de 0,04 sur 100 lots de 4 échantillons prélevés sur 10 arbres différents d'Angélique et de 0,03 sur 50 lots de 4 échantillons prélevés sur 5 arbres différents d'Eucalyptus. Le comportement en sorption du bois semble ainsi homogène aussi bien dans le sens radial (faible variabilité intra-arbre) qu'entre individus (faible variabilité intra-espèce). Le modèle de DENT-G.A.B. se révèle approprié pour représenter l'allure sigmoïde des isothermes de sorption entre 25 et 80 °C : chaque essence peut être ainsi caractérisée en sorption par un modèle simple à trois paramètres dont les valeurs sont reportées dans le tableau page 60.

On retrouve un glissement classique, vers la droite, des isothermes avec l'augmentation de la température ; ce glissement est dû aux différences de pression partielle de va-

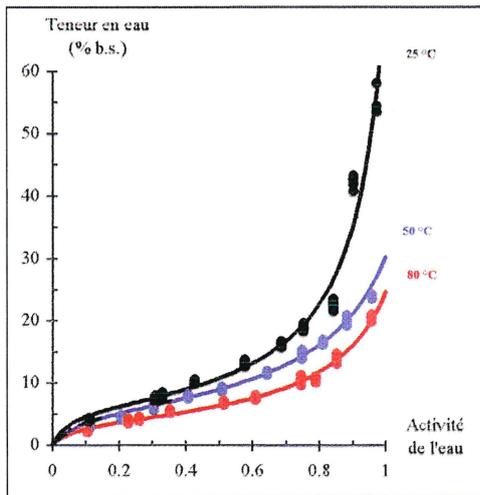


Figure 2. Isothermes de désorption à 25, 50 et 80 °C de l'Angélique (*Dicorynia guianensis*).  
Desorption isotherms at 25, 50 and 80 °C of *Basralocus* (*Dicorynia guianensis*).

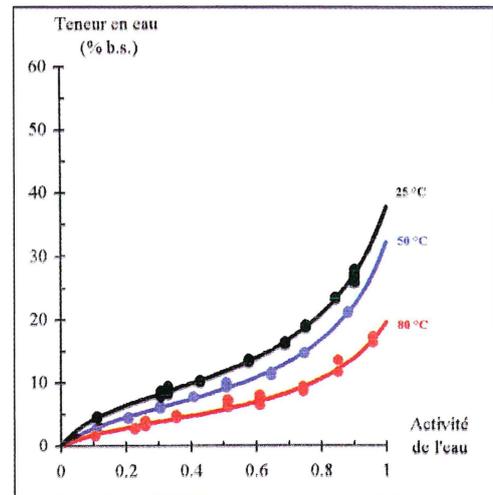


Figure 3. Isothermes de désorption à 25, 50 et 80 °C de l'Eucalyptus (*Eucalyptus grandis*).  
Desorption isotherms at 25, 50 and 80 °C of *Eucalypt* (*Eucalyptus grandis*).

PARAMÈTRES DES MODÈLES G.A.B.-DENT D'AJUSTEMENT AU COMPORTEMENT EN SORPTION D'ESSENCES TROPICALES ET D'ÉLÉMENTS SENSIBLES DE CAPTEUR D'ÉQUILIBRE DU BOIS								
Esence ou produit	Température de sorption (°C)	Xm (% b.s.)		k		C		
		moyenne	écart-type	moyenne	écart-type	moyenne	écart-type	
Angélique ( <i>Dicorynia guianensis</i> )	adsorption	25	7,01	0,20	0,753	0,007	6,76	0,7
	désorption	25	6,53	0,32	0,916	0,007	12,55	6,8
		50	6,01	0,34	0,805	0,015	13,11	5,2
		80	4,02	0,09	0,839	0,005	15,76	2,3
Eucalyptus ( <i>Eucalyptus grandis</i> )	adsorption	25	6,27	0,09	0,776	0,005	10,15	0,6
	désorption	25	8,03	0,14	0,792	0,005	10,40	0,8
		50	6,36	0,18	0,808	0,009	8,22	0,8
		80	4,19	0,25	0,794	0,016	7,98	1,7
Eucalyptus torréfié ( <i>Eucalyptus grandis</i> )	adsorption	25	3,02	0,10	0,832	0,007	16,47	4,3
Iroko ( <i>Milicia excelsa/regia</i> )	désorption	25	8,12	0,26	0,734	0,012	7,47	0,6
		50	5,51	0,20	0,772	0,010	15,26	2,3
		80	3,66	0,16	0,800	0,014	19,19	5,3
Élément sensible 1	désorption	25	5,06	0,40	0,914	0,010	2,71	0,7
		50	3,70	0,10	0,920	0,004	41,48*	19,8*
		80	2,99	0,14	0,860	0,009	8,20	1,8
Élément sensible 2	désorption	25	8,50	0,31	0,736	0,010	8,47	1,1
		50	4,86	0,16	0,827	0,008	10,05	1,6
		80	4,56	0,28	0,737	0,021	15,34	4,5

\* Valeur obtenue avec une incertitude élevée du fait d'une allure convexe marquée de l'isotherme de sorption.

peur d'eau entre bois et milieu environnant, plus élevées avant équilibre; et à un abaissement des forces de liaison eau-bois. La sensibilité du comportement en sorption d'une essence à la température est quantifiable par les énergies de sorption évaluées à partir des coefficients C et k du modèle de comportement.

Cet effet thermique constitue la propriété la plus significative de la sorption, plus particulièrement lorsqu'elle met en jeu les liaisons physiques ou secondaires (physico-sorption) entre la couche multimoléculaire d'eau et les groupes hydroxyles des holocelluloses (celluloses et hémicelluloses) de polarité opposée : les écarts entre les isothermes croissent significativement au-delà de 0,2 d' $a_w$ , c'est-à-dire depuis la saturation des sites de sorption par une monocouche d'eau jusqu'à la limite d'hygroscopicité du bois (point de saturation des fibres) où intervient la condensation capillaire.

Dans la pratique, les isothermes de sorption sont utilisées pour déterminer les teneurs en eau de stabilisation en séchage naturel et en service, ainsi que les teneurs en eau spécifiques vers lesquelles tendent successivement les essences au cours du séchage. Les figures 4 et 6 illustrent les différences de comportement en désorption à 25 et 80 °C des trois essences étudiées, ainsi que par rapport à l'Epicéa de Sitka (*Picea sitkensis*) dont les isothermes mises en forme par KEYLWERTH en 1949 servent de références pour apprécier l'hygroscopicité du bois (KOLLMANN, CÔTÉ, 1984 ; JOLY, MORE CHEVALIER, 1980 ; ALÉON *et al.*, 1990 ; WANG, CHO, 1993).

Ainsi lors d'un séchage conduit à 25 °C jusqu'à une  $a_w$  finale de 0,65 (en équilibre avec une ambiance de 25 °C et de 65 % H.R.), l'Eucalyptus tend, voire se stabilise, vers une teneur en eau finale de 15,7 % b.s. ;

Figure 4. Isothermes de désorption à 25 °C de l'Angélique, de l'Eucalyptus, de l'Iroko et de l'Epicéa de Sitka.

*Desorption isotherms at 25 °C of Basralocus, Eucalypt, Iroko and Sitka Spruce.*

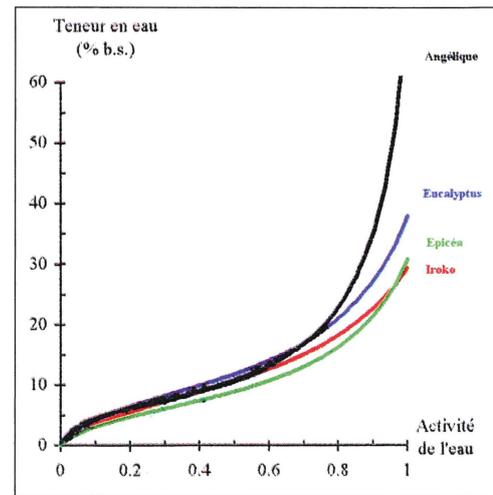


Figure 5. Isothermes de sorption à 25 °C de l'Angélique (*Dicorynia guianensis*).

*Sorption isotherms at 25 °C of Basralocus (Dicorynia guianensis).*

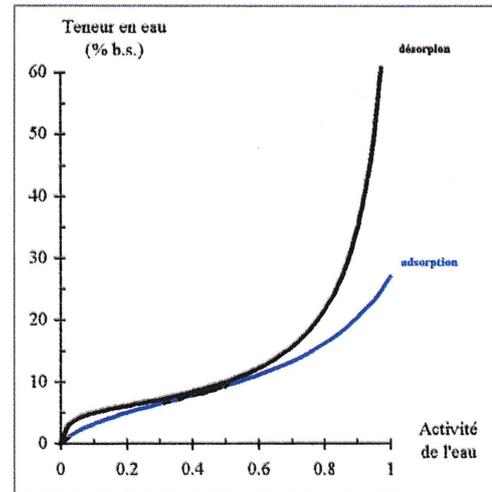
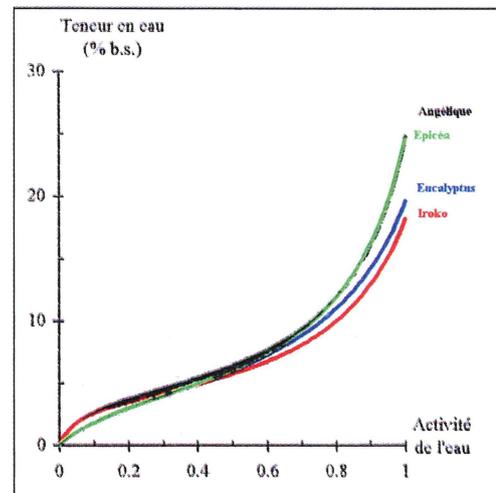


Figure 6. Isothermes de désorption à 80 °C de l'Angélique, de l'Eucalyptus, de l'Iroko et de l'Epicéa de Sitka.

*Desorption isotherms at 80 °C of Basralocus, Eucalypt, Iroko and Sitka Spruce.*



elle est de 14,6 % b.s. pour l'Angélique, de 13,3 % b.s. pour l'Iroko et de 11,7 % b.s. pour l'Epicéa (fig. 4). Ces écarts entre essences augmentent avec l'élévation de l' $a_w$  pour des teneurs en eau finales de stabilisation allant de 23,3, 21,0 et 18,2 % b.s. jusqu'à 0,8 d' $a_w$ , respectivement pour l'Angélique, l'Eucalyptus et l'Iroko, et pour une teneur en eau donnée de 16,2 % b.s. pour l'Epicéa. Ces différences de teneur en eau à l'équilibre sont suffisamment importantes pour tenir compte du comportement spécifique en sorption de l'essence dans les critères d'arrêt du séchage (naturel ou artificiel) et dans l'appréciation de sa stabilité dimensionnelle en service.

Celle-ci est effectivement appréciée à la fois par la sensibilité de l'essence à des variations climatiques (en température et/ou en humidité relative de l'air ambiant) et par l'intensité de son retrait anisotropique. La figure 5 illustre le comportement en désorption puis en adsorption de l'Angélique à 25 °C : si les écarts entre les deux isothermes sont faibles en dessous de 0,6 d' $a_w$ , ils croissent rapidement de 3,5 à plus de 16 % b.s. entre 0,7 et 1 d' $a_w$ . L'hystérésis important mis ainsi en évidence correspond en fait à l'écart maximal observable entre les deux isothermes extrêmes de désorption (depuis l'état vert) et d'adsorption (depuis l'état anhydre). En condition de service, le bois ne subit pas de variations climatiques aussi importantes et l'amplitude des variations de teneur en eau attendues sera inférieure à l'hystérésis intégral, tout en restant très significative même après un nombre important de cycles successifs de désorption-adsorption. Des données partielles sur la sensibilité d'essences tropicales à des variations climatiques ont été acquises par le C.T.F.T. et seront traitées pour enrichir et valori-

ser la base informatisée de données technologiques du CIRAD-Forêt.

Les isothermes de désorption à 80 °C (fig. 6) révèlent des écarts de teneur en eau entre essences plus faibles qu'à 25 °C, avec toutefois un ordonnancement différent en dessous de 0,7 d' $a_w$ , comme on l'observe à 50 °C (THEMELIN *et al.*, 1997). Chaque essence se caractérise donc par un modèle de comportement qui lui est propre. Au-delà de 0,5 d' $a_w$  à 80 °C, l'Eucalyptus et l'Iroko présentent une hygroscopicité moindre que l'Angélique et l'Epicéa, du moins telle qu'elle est rapportée par KEYLWERTH (KOLLMANN, CÔTÉ, 1984). Cette situation serait critique vis-à-vis du comportement mécanique de l'Eucalyptus et de l'Iroko si leur préséchage était conduit à 80 °C du fait qu'à des valeurs de consigne d'humidité d'équilibre (référéncées à l'Epicéa), comprises entre 6 et 24 % b.s., correspondent des valeurs effectives d'équilibre inférieures de plusieurs points. Enfin, lors du reconditionnement de l'Eucalyptus à une teneur en eau de 25 % b.s., il est important de pouvoir garantir des conditions réelles d'étuvage (à 100 °C et 100 % H.R., voire en vapeur pure pendant plusieurs heures) sachant qu'à 80 °C et  $a_w = 1$  cette essence tend déjà vers une humidité d'équilibre inférieure à 20 % b.s.

#### COMPORTEMENT EN ADSORPTION DU BOIS TORRÉFIÉ D'EUCALYPTUS

Les travaux récents menés sur la torréfaction du bois permettent d'envisager de nouvelles applications pour le matériau transformé, celui-ci devenant beaucoup moins sensible à l'attaque des micro-organismes et ainsi plus apte que le bois non modifié à être utilisé en environnement hostile. La modification des héli-

celluloses, et dans une moindre mesure celle de la cellulose par des réactions secondaires, seraient à l'origine des nouvelles propriétés du bois traité, les lignines ne jouant qu'un rôle secondaire (ROUSSET, 1996 ; GIRARD *et al.*, 1997). Les hémicelluloses étant les constituants les plus hygroscopiques du bois, leur altération ne peut en conséquence que modifier le comportement global en sorption du matériau.

La figure 7 illustre l'influence du procédé de torréfaction sur le comportement en adsorption du bois d'Eucalyptus à 25 °C. Comparativement au comportement homogène en adsorption du bois de même origine, celui des placages torréfiés à 220 °C reste homogène avec des teneurs en eau à l'équilibre très centrées sur leurs moyennes et suivant des coefficients moyens de variation respectifs de 0,01 et 0,04. A partir de 0,05 d' $a_w$ , l'isotherme d'adsorption du bois torréfié est très en dessous de celle du bois natif, avec une hygroscopicité réduite de 5 à 9,5 g eau/100 g b.s. entre 0,6 et 1 d' $a_w$ ; cette amplitude est, par ailleurs, supérieure à l'hystérésis observée à 25 °C jusqu'à 0,95 d' $a_w$  entre les courbes limites de désorption et d'adsorption du bois non modifié.

L'ajustement des modèles aux valeurs expérimentales révèle des jeux de paramètres significativement différents entre bois non modifié et bois torréfié par des intervalles de confiance distincts (cf. tableau, p. 60). La diminution de plus de 50 % de la valeur de  $X_m$  en adsorption par le procédé de torréfaction traduit une réduction significative de la surface spécifique d'échange et donc du nombre de sites disponibles d'adsorption de la vapeur d'eau sur le matériau. De plus, les phénomènes de condensation capillaire semble de même atténués par le trai-

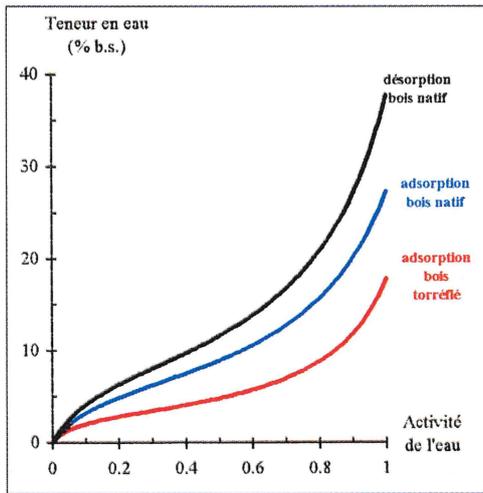


Figure 7. Isothermes de sorption à 25 °C des bois natif et torréfié d'Eucalyptus (*Eucalyptus grandis*). Sorption isotherms at 25 °C of native and torrefied wood of Eucalypt (*Eucalyptus grandis*).

cifique et une porosité élevée favorable à la condensation capillaire.

Les travaux antérieurs ont montré, de plus, que ces éléments sensibles ne reproduisent pas fidèlement le comportement en désorption non seulement de l'Épicéa de référence (THEMELIN *et al.*, 1996), mais aussi celui de l'ensemble des essences tropicales étudiées (THEMELIN *et al.*, 1996 et 1997). Les différences de comportement induisent des situations critiques lors du séchage ou limitent les possibilités d'optimisation du procédé en sous-estimant ou surestimant les écarts entre teneur en eau instantanée et teneur en eau à l'équilibre du bois, termes moteurs du séchage.

tement de torrification : entre 0,9 et 1 d' $a_w$ , la variation de teneur en eau à l'équilibre diminue de 10 à 7, puis à 5,5 g eau/100 g m.s. en passant respectivement de l'isotherme de désorption à l'isotherme d'adsorption du bois non modifié, puis à celle du bois torréfié.

La dégradation thermique des hémicelluloses est donc déjà bien amorcée dans les conditions opératoires retenues pour conférer à l'Eucalyptus une diminution significative de son hygroscopicité.

Toutefois, ces deux éléments sensibles se distinguent par des comportements en désorption très différents : les isothermes de l'élément n° 1 présentent une allure légèrement plus convexe vers les abscisses, se traduisant par une hygroscopicité nettement plus faible entre 0,1 et 0,9 d' $a_w$ , avec une valeur de  $X_m$  la plus faible de tous les produits étudiés (cf. tableau, p. 60), puis plus élevée au-delà de 0,9 d' $a_w$ . L'élément sensible n° 1 se caractérise ainsi par une faible surface spé-

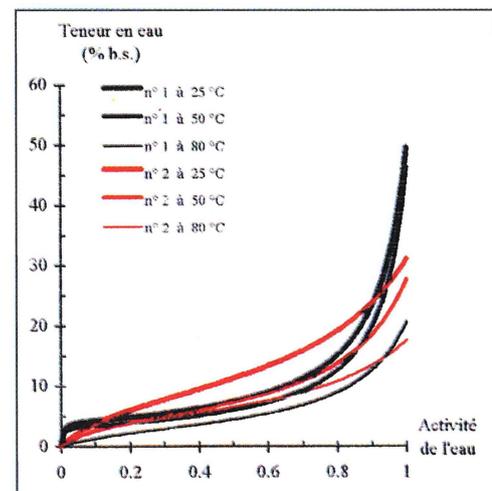
## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

La méthode de caractérisation du comportement en sorption de produits ligno-cellulosiques se révèle bien adaptée pour appréhender leur comportement hygroscopique. Le modèle de DENT-G.A.B. semble de même approprié pour décrire le comportement en sorption entre 25 °C et 80 °C des essences et des produits étudiés.

### COMPORTEMENT EN SORPTION D'ÉLÉMENTS SENSIBLES DE CAPTEUR D'HUMIDITÉ D'ÉQUILIBRE DU BOIS

La figure 8 représente les isothermes de désorption de 25 à 80 °C des deux types d'éléments sensibles de capteurs d'humidité d'équilibre du bois. Le conditionnement industriel de ces produits ligno-cellulosiques induit un comportement en sorption aussi homogène que celui du bois des essences précédentes, avec des teneurs en eau résiduelles très centrées sur leurs moyennes suivant des coefficients moyens de variation de 0,035.

Figure 8. Isothermes de désorption à 25, 50 et 80 °C de deux éléments sensibles de capteurs d'humidité d'équilibre du bois. Desorption isotherms at 25, 50 and 80 °C of two sensitive elements of wood equilibrium moisture content sensors



La qualité des équipements et des manipulations permet d'apprécier la variabilité du comportement en sorption au sein d'une même espèce, puis entre espèces différentes, voire de détecter les singularités de tissus particuliers tels que bois juvénile, bois de tension. Cette méthode de caractérisation peut enfin constituer les premiers éléments d'un fichier de base de données spécifiques sur le comportement en sorption du bois d'œuvre, facilitant l'étude de relations entre propriétés physico-chimiques.

La méthode et ce modèle peuvent ainsi être appliqués sur d'autres essences de bois d'œuvre aux caractéristiques physiques et chimiques différentes, ainsi que sur d'autres produits ligno-cellulosiques. Cette première étape permet d'envisager des opérations de transfert de savoir-faire afin de développer en réseau des études parallèles du comportement en sorption d'essences tropicales sur différents continents. La méthodologie adoptée sera, de même, comparée à d'autres approches développées par quelques laboratoires européens dans le cadre des échanges scientifiques des COST : en tenant compte du mode de conditionnement des produits, des méthodes utilisées (statique ou dynamique), de la qualité des équipements et des protocoles mis en œuvre.

Les essences étudiées à ce jour se caractérisent par des évolutions différentes de leur comportement en désorption avec la température ; elles limitent, dans l'état des connaissances actuelles, un possible regroupement en un modèle de comportement généralisé. Toutefois, l'identification et l'intégration des caractéristiques de sorption

dans la base de données informatisée du programme Bois autorise la recherche de corrélations entre les paramètres des modèles identifiés de chaque essence et leurs caractéristiques physico-chimiques connues (densité basale, rétractibilité, point de saturation des fibres, composition chimique...).

Chaque essence étudiée se caractérisant par un comportement en sorption propre, la tâche est donc immense. Les travaux ultérieurs sont envisagés dans le cadre de transferts de savoir-faire vers nos partenaires des régions chaudes et par le développement de méthodes de caractérisation plus rapides, notamment pour apprécier l'évolution de l'hystérésis dans la stabilité dimensionnelle des bois en service.

Enfin, la caractérisation du comportement en désorption du bois permet d'accéder à des valeurs d'équilibre et des modèles de comportement directement intégrables dans les tables de séchage et les logiciels de supervision des séchoirs industriels.

L'analyse comparative des isothermes du bois d'Eucalyptus avant et après torréfaction confirme une réduction significative du nombre de sites de sorption de la vapeur d'eau par le procédé. Dans les conditions opératoires retenues sur l'Eucalyptus, la dégradation thermique des hémicelluloses est certainement déjà bien amorcée pour conférer au bois une diminution significative de son hygroscopicité. Il reste toutefois, là aussi, à évaluer l'amplitude de l'hystérésis du bois torréfié et son évolution dans le temps au travers de cycles successifs adsorption-désorption. De même, il est important de mettre en évidence

l'influence des conditions de torréfaction sur le comportement en sorption du produit final. Cette étude nécessite de définir le jeu de facteurs, a priori pertinents, parmi l'ensemble des variables de contrôle-commande d'un procédé combinant un séchage de finition et une pyrolyse partielle, tout en intégrant les autres critères d'optimisation liés aux caractéristiques physiques, mécaniques, de durabilité, d'usinabilité et de finition.

L'étude des deux éléments sensibles de capteurs industriels de l'humidité d'équilibre du bois identifie des différences importantes de comportement en sorption à la fois entre les éléments sensibles et les essences tropicales étudiées. Cette première approche nous sert de référence pour proposer une étude comparative du comportement en sorption des différents éléments sensibles mis sur le marché par les constructeurs de séchoirs et/ou de systèmes de régulation. Elle permettra d'envisager la formulation d'éléments sensibles, capables de reproduire fidèlement le comportement en sorption des essences traitées. □

**Remerciements :** L'auteur tient à remercier Anne-Marie VERGNET du CIRAD, Nathalie OSER et Julie REBOLLO, élèves-ingénieurs de l'Université de Technologie de Compiègne, pour leurs contributions à l'adaptation et la mise en place de la méthode de détermination des isothermes de sorption, ainsi que Jean-Louis KERGUEME de l'Université Montpellier II pour la réalisation des opérations de déroulage au L.M.G.C.

► André THEMELIN  
Programme Bois  
CIRAD-Forêt



## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ALÉON D., CHANRION P., NÉGRÉ G., PEREZ J., SNIEG O., 1990.  
Séchage du bois. Guide pratique. Paris, France, Editions Bégassat, 103 p.
- AVRAMIDIS S., 1997.  
The basics of sorption. *In* : Proceedings of the International Conference on Wood-water relations of COST Action E8 Mechanical Performance of Wood and Wood Products, Copenhagen, 16-17 juin 1997. Copenhagen, Denmark, Danish Technical University, 15 p.
- BIMBENET J.J., LONCIN M., 1995.  
Les bases du génie des procédés alimentaires. Paris, France, Editions Masson, 304 p.
- DENT R. W., 1977.  
A multilayer theory for gas sorption. Part I : sorption of a single gas. *Textile Research Journal*, 145-152.
- GIRARD P., DIROL D., VITANIEMI P., PERMADI P., 1997.  
Upgrading of non-durable wood timber species by appropriate thermal treatment. *In* : Proceedings of the International Division 5 IUFRO Conference, Pullman, July 7-12, 1997, Pullman, U.S.A., Washington State University, 10 p.
- IGLESIAS H. A., CHIRIFE J., 1976.  
Isothermic heat of water vapor sorption on dehydrated foods. Part II. Hysteresis and heat of sorption. Comparison with B.E.T. theory. *Lebensm. - Wiss. - Technol*, 9 (2) : 123-127.
- JOLY P., MORE-CHEVALIER F., 1980.  
Théorie, pratique et économie du séchage des bois. Paris, France, Editions Vial, 203 p.
- JOWITT R., WAGSTAFFE P. J., 1989.  
The certification of the water content of microcrystalline cellulose (M.C.C.) at 10 water activities, C.R.M. 302. B.C.R. information EUR 12429 EN. Bruxelles, Belgique, C.E.E., 54 p.
- KOLLMANN F. F. P., CÔTÉ Jr. W. A., 1984.  
Principles of wood science and technology. New York, U.S.A., Edition Springer-Verlag, 591 p.
- KOPONEN H., 1985.  
Sorption isotherms of finnish birch, pine and spruce. *Paperi ja Puu-Papper och Trä* 2 : 70-77.
- LABUZA T. P., KAAANANE A., CHEN J. Y., 1985.  
Effect of temperature on the moisture sorption isotherms and water activity shift of two dehydrated foods. *Journal of Food Science* 50 : 385-391.
- ROUSSET P., 1996.  
Modification des constituants du bois sous l'action de la chaleur et conséquences sur ses propriétés. Montpellier, France, CNAM-CIRAD-Forêt, 39 p.
- SIAU J. F., 1995.  
Wood : influence of moisture on physical properties. Keene, U.S.A., Virginia Polytechnic Institute and State University, 227 p.
- SKAAR C., 1988.  
Wood-water relations. Berlin, Germany, Edition Springer-Verlag, 283 p.
- SPIESS W. E. L., WOLF W. R., 1987.  
Critical evaluation of methods to determine moisture sorption isotherms. *In* : Water activity : theory and applications of food, I.F.T. symposium series. New York, U.S.A., Edition Marcel Dekker, 215-233.
- THEMELIN A., VERGNET A.-M., 1997.  
Méthode de détermination d'isothermes de sorption de produits ligno-cellulosiques. Application aux essences tropicales de bois d'œuvre et de bois transformé. *Les Cahiers scientifiques du bois* 1 : 159-169. Nancy, France, Arbolor, 11 p.
- THEMELIN A., VERGNET A.-M., OSER N., 1996.  
Method for determining the sorption behaviour of lignocellulosic materials. Application to tropical wood species. Paper presented to the 5th International IUFRO Wood Drying Conference, Quebec City, 13-17 août 1996. Québec City, Canada, Université de Laval et FORINTEK, 10 p.
- THEMELIN A., REBOLLO J., THIBAUT A., 1997.  
Method for defining the behaviour of lignocellulosic materials at sorption. Application to tropical wood species. *In* : Proceedings of the International Conference on Wood-water relations of COST Action E8 Mechanical Performance of Wood and Wood Products, Copenhagen, 16-17 juin 1997. Copenhagen, Denmark, D.T.U., 15 p.
- WANG S. Y., CHO C. L., 1993.  
Equilibrium moisture contents of six wood species and their influences. *Mokuzai Gakkaishi Journal of the Japanese Wood Research Society*, 39 (2) : 126-137.

## R É S U M É

## COMPORTEMENT EN SORPTION DE PRODUITS LIGNO-CELLULOSIQUES

On s'intéresse ici au développement d'une méthode de référence pour déterminer les états d'équilibre des essences tropicales et du bois thermiquement modifié en fonction des conditions de service. Cette méthode permet aussi d'acquérir des données spécifiques sur les états d'équilibre vers lesquels tendent les bois et les éléments sensibles de capteurs d'humidité au cours du séchage.

Les relations spécifiques, à l'équilibre thermodynamique, entre teneur en eau des produits et leurs conditions ambiantes sont étudiées à partir de la détermination expérimentale des isothermes de sorption de vapeur d'eau (desorption du bois vert et adsorption du matériau anhydre). Ces isothermes sont établis à l'aide d'une méthode statique gravimétrique éprouvée, appliquée au CIRAD sur différents produits tropicaux. L'ajustement des valeurs expérimentales à un modèle à trois paramètres permet d'accéder à des caractéristiques physiques et thermodynamiques.

Des perspectives de développement sont données au travers d'applications réalisées dans le cadre de projets : appréciation des variabilités intra- et interspécifique du comportement en sorption du bois, influence de la transformation thermo-chimique du bois par torréfaction sur l'hygroscopicité du matériau et évaluation du comportement en sorption d'éléments sensibles de capteurs d'humidité d'équilibre utilisés dans la régulation des séchoirs industriels.

**Mots-clés : Eau. Bois. Sorption. Séchage. Capteur.**

## A B S T R A C T

## SORPTION BEHAVIOUR OF LIGNO-CELLULOSIC PRODUCTS

The discussion deals with the development of a reference method for determining the states of equilibrium of tropical species and of thermally-modified timber according to service conditions. This method also provides specific data on the states of equilibrium towards which tend the timber and the sensitive elements of moisture sensors during drying.

The specific relations, in thermodynamic equilibrium, between the moisture content of the products and their ambient conditions are studied through the experimental determination of water vapour sorption isotherms (desorption of green wood and adsorption of anhydrous material). These isotherms are established by means of a proven gravimetric static method used at the CIRAD on different tropical products. The adjustments of experimental values to a three-parameter model gives access to the physical and thermodynamic properties. Development prospects are given through applications completed within the framework of projects : assessment of intra- and interspecific variabilities in the sorption behaviour of wood, influence of thermochemical processing of the wood by torrefaction on the hygroscopicity of the material and evaluation of the sorption behaviour of the sensitive elements of equilibrium moisture content sensors used in industrial kiln control.

**Key words : Water. Wood. Sorption. Drying. Sensor.**

## R E S U M E N

## COMPORTAMIENTO EN SORCIÓN DE PRODUCTOS LIGNO-CELULÓSICOS

Se trata del desarrollo de un método de referencia para determinar los estados de equilibrio de las especies tropicales y de la madera modificada térmicamente en función de las condiciones de servicio. Este método permite también la toma de datos específicos acerca de los estados de equilibrio hacia los cuales tienden las maderas y los elementos sensibles de los captadores de humedad durante el secado.

Las relaciones específicas del equilibrio termodinámico entre el contenido de agua de los productos y sus condiciones ambientales se estudiaron a partir de la determinación experimental de las isoterms de sorción de vapor de agua (desorción de la madera verde y adsorción del material completamente seco). Estas isoterms se establecen mediante un método estático gravimétrico, ya experimentado, que se aplica en el CIRAD sobre diferentes productos tropicales. El ajuste de los valores experimentales a un modelo con tres parámetros permite el acceso a las características físicas y termodinámicas.

Se proponen una serie de perspectivas de desarrollo a través de las aplicaciones realizadas en el marco del proyecto : apreciación de las variabilidades intra e interespecíficas del comportamiento en sorción de la madera, influencia de la transformación termoquímica de la madera por torrefacción sobre la higroscopicidad del material y evaluación del comportamiento en sorción de elementos sensibles de captadores de humedad de equilibrio empleados en la regulación de secaderos industriales.

**Palabras clave : Agua. Madera. Sorción. Secado. Captador.**



## SYNOPSIS

## SORPTION BEHAVIOUR OF LIGNO-CELLULOSIC PRODUCTS

ANDRÉ THEMELIN

The discussion deals with the development of a reference method for determining the states of equilibrium of tropical species and of thermally-modified timber according to service conditions. This method also provides specific data on the states of equilibrium towards which tend the timber and the sensitive elements of moisture sensors during drying.

#### ADAPTATION OF A REFERENCE SORPTION METHOD TO WOOD PRODUCTS

The specific relations, in thermodynamic equilibrium, between the water content of the products and their ambient conditions are studied through the experimental determination of water vapour sorption isotherms (desorption of green wood and adsorption of anhydrous material). These isotherms are established by means of a proven gravimetric static method used at the CIRAD on different tropical products. The adjustment of experimental values to a three-parameter model gives access to the physical and thermodynamic properties.

Several illustrations and development prospects are given based on applications completed in connection with current and future projects.

In general, this method of characterising the sorption behaviour of ligno-cellulosic products is found to be very valuable for understanding their hygroscopic behaviour. The quality of the equipment and handling operations allows sorption

behaviour variability to be determined within the same species, and then between different species, and even the detection of singularities of special tissues such as juvenile wood and tension wood.

This first phase allows the consideration of know-how transfer operations for the network development of parallel sorption behaviour studies on tropical species from different continents. The adopted methodology will be on the same way compared with other approaches used by some European laboratories in COST scientific exchanges, taking into account product conditioning modes, methods used (static or dynamic), and the quality of equipment and protocols employed.

#### DEVELOPMENT OF WOOD STABILITY AND DRYING

The species studied to date are characterised by evolutions different from their desorption behaviour with temperature, thus limiting, in the present state of our knowledge, the possibility of grouping in a generalised behaviour model. Subsequent works are considered in connection with know-how transfers to our partners in tropical regions and through the development of faster characterisation methods, in particular for determining the evolution of hysteresis in the dimensional stability of timber in service.

Finally, the characterisation of the desorption behaviour of the wood gives ac-

cess to equilibrium values and behaviour models that can be integrated directly in drying schedules and industrial kiln supervision software.

Comparative analysis of the isotherms of Eucalyptus wood before and after torrefaction confirms a significant reduction in the number of water vapour sorption sites by the process. Under the operating conditions adopted for Eucalyptus, thermal degradation of hemicellulose has certainly progressed well enough for a significant reduction of hygroscopicity in the wood. It is however still necessary to evaluate the extent of hysteresis in torrefied wood and its evolution with time through successive adsorption-desorption cycles, as well as the influence of torrefaction conditions on the sorption behaviour of the end product.

#### DEVELOPMENT OF WOOD DRYING CONTROL

The study of the two sensitive elements of industrial equilibrium moisture content sensors shows the significant sorption behaviour differences between elements and with the studied tropical species. This first approach offers a reference for the proposal of a comparative sorption behaviour study on different sensitive elements placed on the market by kiln and/or regulation system manufacturers. It makes it possible to consider the design of sensitive elements capable of reliably reproducing the sorption behaviour of the treated species. □