



HAL
open science

Modélisation du séchage convectif basse température et optimisation du séchage du hêtre vis à vis des problèmes de discoloration

Rubén A. Ananias

► **To cite this version:**

Rubén A. Ananias. Modélisation du séchage convectif basse température et optimisation du séchage du hêtre vis à vis des problèmes de discoloration. Sciences de l'ingénieur [physics]. Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2000. Français. NNT : 2000NAN10174 . tel-01748182

HAL Id: tel-01748182

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748182v1>

Submitted on 29 Mar 2018

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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



UNIVERSITE HENRI POINCARÉ NANCY I

Ecole Nationale Supérieure des Technologies et Industries du Bois (ENSTIB)
Laboratoire d'Etudes et de Recherches sur le Matériau Bois (LERMAB)

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

N° attribué par la bibliothèque

LLLLLLLLLLLL

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE Henri Poincaré, Nancy I

Discipline: **Sciences du bois**

présentée et soutenue publiquement
par

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

Rubén A. ANANIAS

Professeur Associé à l'Université du Bío-Bío, Concepción, Chili.

le 22 décembre 2000

Titre:

**MODELISATION DU SECHAGE CONVECTIF BASSE TEMPERATURE ET
OPTIMISATION DU SECHAGE DU HETRE VIS A VIS DES PROBLEMES
DE DISCOLORATION**

Membres du Jury

Président :	M. André ZOULALIAN	Professeur, Université Henri Poincaré
Rapporteurs :	M. Stéphane QUIDEAU	Professeur, Institut du Pin, Université Bordeaux 1
	M. Bernard THIBAUT	Directeur de Recherches CNRS, Université Montpellier 2
Examineurs:	M. Jean Pierre HALUK	Maître de Conférences à l'ENSAIA-INPL, Nancy
	M. Eric MOUGEL	Maître de Conférences, à l'ENSTIB, Epinal.
	M. Patrick PERRE	Professeur ENGREF, Nancy.
Invité:	M. Walter KAUMAN	Conseiller Scientifique

à ma femme Rossana

à mon fils **Kamel V. ANANIAS**



Voici mon secret.

Il est très simple.

On ne voit bien qu'avec le cœur.

L'essentiel est invisible pour les yeux.

Antoine SAINT-EXUPERY

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

REMERCIEMENTS

Mes remerciements à :

M. Gustavo CHIANG et mes collègues, mes remerciements pour m'avoir permis de venir en France et à l'Université du Bío-Bío ma reconnaissance pour le financement de mes études.

M. Laurent CHRUSCIEL, je tiens à vous remercier de votre grande amabilité et votre gentillesse. Votre disponibilité m'a été d'un grand soutien. Toute ma gratitude et ma reconnaissance pour vos grandes qualités professionnelles et humaines.

M. Xavier DEGLISE, mes remerciements pour l'aide précieuse lors des démarches administratives

M. Jean-Pierre HALUK, je tiens à vous remercier pour votre soutien professionnel et vos observations toujours pertinentes pour l'amélioration de ma thèse.

M. Walter KAUMAN, mes remerciements pour votre encouragement à venir en France et ma profonde gratitude pour accepter de prendre part au jury malgré des problèmes de santé

M. Eric MOUGEL, je tiens à vous remercier pour votre soutien professionnel comme co-Directeur de mes études, votre confiance et votre amitié. Ma reconnaissance pour les dispositions prises afin de faciliter mon séjour en France.

M. Patrick PERRE, mes remerciements pour accepter d'examiner ma thèse.

M. Stéphane QUIDEAU, je tiens à vous remercier pour accepter de rapporter sur ma thèse.

M. Bernard THIBAUT, mes remerciements pour accepter de rapporter sur ma thèse.

M. André ZOULALIAN, je tiens à vous remercier de m'avoir accueilli au sein du laboratoire et tant apporté comme Directeur de mon programme de recherches.

Je remercie également pour leur aide précieuse, le personnel du laboratoire de chimie, de l'atelier de mécanique et de l'administration de l'ENSTIB.

SOMMAIRE

	page
INTRODUCTION GENERALE	7
Part A :	8
MODELISATION DE LA VITESSE DE SECHAGE DANS UN SECHOIR A BOIS CONVECTIF BASSE TEMPERATURE	
LISTE DE SYMBOLES	9
I INTRODUCTION	11
II LES DIFFERENTES ESTIMATIONS DE LA VITESSE DE SECHAGE	11
III DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET DES CONDITIONS OPERATOIRES DES ESSAIS DE SECHAGE	16
IV RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION	19
V CONCLUSIONS	32
LITERATURE CITEE	33
ANNEXES	36
Annexe a.1.- Evaluation de l'humidité du bois à l'équilibre	37
Annexe a.2.- Evaluation des grandeurs physico-chimiques de l'air humide	38
Annexe a.3.- Géométrie et conditions opératoires des différents cycles de séchage réalisés pour l'optimisation de la relation donnant le coefficient de transfert global K	41

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

Part B :	42
DISCOLORATION AU COURS DU SECHAGE A BASSE TEMPERATURE DU HETRE	
I INTRODUCTION	43
II REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	44
2.1.- Généralités	44
2.2.- Origine de la discoloration du hêtre	45
2.3.- Les facteurs qui conditionnent la discoloration du hêtre	47
2.4.- Prévention et remèdes	50
III DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET DES MESURES REALISEES	54
3.1.- Dispositifs expérimentaux	57
3.2.- Description des mesures effectuées	59
3.2.1.- Mesure de l'humidité des échantillons	59
3.2.2.- Mesure de la discoloration	59
3.2.3.- Dosage spectrophotométrique des tanins condensés du hêtre	61
3.2.4.- Caractérisation chromatographique sur couches minces.	61
IV RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION	62
4.1.- Etude des paramètres physiques conditionnant le développement des discolorations du hêtre au cours du séchage	62
4.1.1.- Description des cycles de séchage réalisés	62
4.1.2.- Influence des conditions de séchage sur la discoloration	67
4.2.- Etude des mécanismes à l'origine de la discoloration	70
4.2.1.- Description des cycles de séchage sous différentes atmosphères – mise en évidence du rôle de l'oxygène	70
4.2.2.- Mise en évidence de l'implication des extractibles (tanins condensés)	78
4.2.3.- Mise en évidence de l'oxydabilité des tanins condensés.	83
4.2.4.- Le mécanisme à l'origine de la discoloration du hêtre au cours du séchage	90

V CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	92
VI CONCLUSION GENERALE	93
LITERATURE CITEE	94
ANNEXES	97
Annexe b.1.- Les extractibles du hêtre <i>Fagus sylvatica</i>	98
Annexe b.2.- Mesure des coordonnées chromatiques.	100
Annexe b.3.- Détermination de la teneur en tanins condensés (Méthode Irmouli, 1998)	102
Annexe b.4.- Chromatographie sur couche mince.(Méthode CCM-DMACA)	104
Annexe b.5.- Cycles de séchage en atmosphère désoxygénée (série 3)	105
Annexe b.6.- Evolution de la luminance (série 4 , cycles 18 à 26)	106
Annexe b.7.- Evolution de la luminance (série 5, cycle 27 à cycle 38)	108

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

INTRODUCTION GENERALE

Les études antérieures réalisées au Laboratoire d'Etudes et de Recherches sur le Matériau Bois dans le domaine du séchage convectif basse température ont montré que la vitesse de séchage pouvait être exprimée de manière purement phénoménologique en introduisant un coefficient de transfert global convectif dépendant de quatre paramètres opératoires à savoir : l'épaisseur des avivés, la vitesse, la température et l'humidité de l'air humide circulant à l'extérieur des avivés.

La première partie de notre travail de recherche a eu comme objectif une justification de cette approche tout en la comparant à une autre approche globale proposée par Van Meel.

La deuxième partie de notre recherche s'inscrit dans le domaine général de l'optimisation du séchage convectif et de la qualité du bois séché.

Nous nous intéresserons plus particulièrement au phénomène de discoloration du hêtre qui peut apparaître lors d'un séchage convectif basse et moyenne température. L'objectif est de préciser l'origine vraisemblable de la discoloration et de montrer qu'en fonction du choix des conditions opératoires il est possible d'accentuer mais aussi de limiter les phénomènes de discolorations.

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHEQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

PART A :

**MODELISATION DE LA VITESSE DE SECHAGE DANS UN SECHOIR A BOIS
CONVECTIF BASSE TEMPERATURE**

SCD UMR 9844
BIBLIOTHEQUE CENTRALE
RUE DE L'UNIVERSITE
34000 MONTPELLIER

LISTE DE SYMBOLES

Lettres latines

- a_0 = constante ($m^2.s.kg^{-1}$)
 a = largeur du bois (m)
 A = largeur du séchoir (m)
 a_b = largeur des baguettes (m)
 b_0 = constante ($m^2.s.kg^{-1}$)
 C_p = chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
 c_0 = constante (K^{-1})
 D_h = diamètre hydraulique (m)
 e = épaisseur du bois (m)
 E = erreur relative (%)
 e_b = épaisseur des baguettes (m)
 h = coefficient de transfert de chaleur ($w.m^2.^{\circ}C^{-1}$)
 H = hauteur du séchoir (m)
 HR = humidité relative de l'air (/)
 K = coefficient global de transfert de matière ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)
 k_G = coefficient de transfert de matière du côté de la phase gazeux ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)
 l = longueur du bois (m)
 L = longueur du séchoir (m)
 M_0 = masse anhydre du bois (kg)
 n = constante
 N = nombre de pièces du bois à sécher
 n_{bL} = nombre de baguettes par lit du bois
 N_L = nombre de lit du bois
 N_{pL} = nombre de pièces du bois par lit
 N_u = nombre de Nusselt
 P_m = périmètre mouille (m)
 P_r = nombre de Prandtl
 P_1 = pression partielle de vapeur d'eau à l'interface bois-air (at)
 P = pression partielle de vapeur d'eau dans l'air extérieur (at)
 P_{sat} = pression de vapeur de saturation (at)
 Re = nombre de Reynolds
 R_E = résistance externe ($m^2.s.kg^{-1}$)
 R_I = résistance interne ($m^2.s.kg^{-1}$)
 S = surface de séchage (m^2)
 S_a = surface de passage d'air (m^2)
 t = temps (s)
 T = température sèche de l'air ($^{\circ}C$)
 T_H = température humide de l'air ($^{\circ}C$)
 v = vitesse de l'air ($m.s^{-1}$)
 w = humidité absolue de l'air ($kg.kg^{-1}$)
 x^* = humidité du bois en équilibre avec l'air extérieur ($kg.kg^{-1}$)
 x_{ini} = humidité initiale du bois ($kg.kg^{-1}$)
 x_{fin} = humidité finale du bois ($kg.kg^{-1}$)
 \bar{x} = humidité moyenne du bois ($kg.kg^{-1}$)
 \bar{x}_{PSF} = humidité moyenne absolue du bois à la saturation des fibres ($kg.kg^{-1}$)

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

\bar{x}_c = humidité moyenne du bois à la fin de la première étape de séchage ($\text{kg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Symboles grecs

Φ = vitesse de séchage ($\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$)

Φ^+ = vitesse de séchage réduite

Φ_{MAX} = vitesse de séchage maximale ($\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$)

Ω = chaleur latente de vaporisation de l'eau à la température TH ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$)

ϕ = paramètre adimensionnel

χ = fraction molaire de vapeur

ν = viscosité cinématique ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)

μ = viscosité dynamique ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$)

λ = conductivité thermique ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{°C}^{-1}$)

ρ = masse volumique de l'air ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)

I.- INTRODUCTION

Dans son travail de thèse, Karabagli (1998) a testé un séchoir convectif à bois basse température constitué de panneaux de bois recouverts d'un revêtement polymérique et il a montré qu'au bout d'un nombre de cycles élevé et pour différentes essences, le séchoir ne présentait aucune détérioration. De plus, il a proposé pour le suivi du séchage au cours de temps un modèle de séchage où la vitesse de séchage (débit d'eau transféré entre la pile de bois et l'air extérieur) était exprimée de manière purement phénoménologique. Le but de cette première partie est de justifier la loi phénoménologique utilisée et de montrer que dans le cas d'opérations de séchage effectuées à des températures basses et moyennes (inférieures ou égales à 70 °C), les courbes caractéristiques de séchage préconisées par Van Meel (1958) et utilisées par Basilico (1985), Moser (1992), Martin et al. (1995) ne s'appliquent pas nécessairement aux opérations de séchage basse et moyenne température.

II LES DIFFERENTES ESTIMATIONS DE LA VITESSE DE SECHAGE

Le schéma général du séchage convectif des matériaux poreux comme le bois comporte trois étapes:

-Première étape : elle est observée lorsque l'humidité initiale du bois est élevée. A la surface du bois la pression partielle de vapeur d'eau est égale à la pression de vapeur saturante de l'eau à la température de l'interface, elle-même égale à la température humide de l'air extérieur. Au sein du bois, la migration de l'eau se fait par capillarité et dans cette étape le processus limitant est l'apport d'énergie. Par suite, si les températures de l'air et de l'interface restent constantes, il en sera de même pour la vitesse de séchage.

-Deuxième étape : à la surface du bois, l'eau évaporée n'est plus à l'état liquide et la pression de vapeur d'eau est inférieure à la pression de vapeur saturante et la température de l'interface supérieure à la température humide. Les échanges massiques et thermiques décroissent et il en est de même pour la vitesse de séchage. Dans cette deuxième étape, l'eau dans le bois se trouve sous forme d'eau libre et d'eau liée en équilibre avec la vapeur d'eau présente dans les lumens.

Troisième étape : elle correspond au séchage du bois dans son domaine hygroscopique, c'est à dire en l'absence d'eau libre. Les transferts de l'eau liée et de l'eau vapeur se font

exclusivement par diffusion. L'humidité du bois à la surface tend vers l'humidité d'équilibre avec la phase gazeuse externe. La vitesse de séchage diminue et tend progressivement vers zéro.

L'allure de la variation de la vitesse de séchage Φ en fonction du temps est voisine de cette schématisée sur la figure 1. Nous verrons par la suite que ceci n'est pas toujours vérifié.

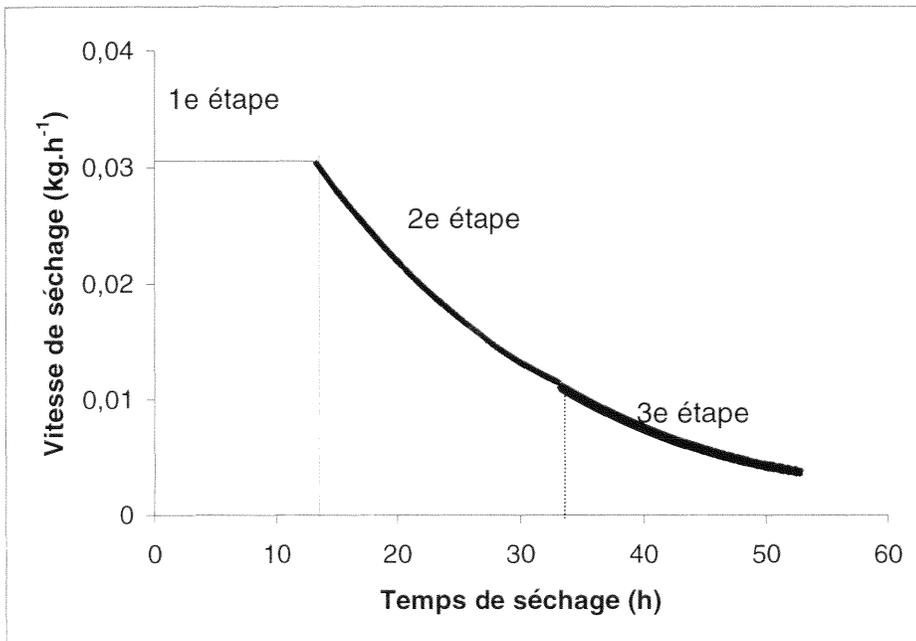


Figure 1 : Les étapes du séchage convectif du bois

A ce stade, signalons qu'au lieu d'introduire la vitesse de séchage Φ , les auteurs introduisent la dérivée temporelle de l'humidité moyenne du bois, soit \bar{x}

En effet un bilan de matière global (ou local) de l'eau au niveau du bois, conduit à :

$$\Phi = -M_0 \frac{d\bar{x}}{dt} \quad (1)$$

où M_0 représente la masse globale (ou locale) du bois anhydre en contact avec l'air de séchage.

Nous allons dans ce qui suit rappeler brièvement certaines études relatives à l'évaluation de la vitesse de séchage.

La vitesse de séchage peut être caractérisée en se limitant à la résistance de transfert du côté de la phase gazeuse (Bramhall, 1979), soit :

$$\Phi = k_G \cdot S \cdot (P_i - P) \quad (2)$$

où

S est la surface d'échange entre le bois et l'air extérieur.

P_i est la pression partielle de vapeur d'eau à l'interface bois-air.

P est la pression partielle de vapeur d'eau dans l'air extérieur.

Le coefficient de transfert k_G peut être estimé à l'aide de corrélations mais l'évaluation de Φ nécessite la connaissance de la pression partielle P_i . Le lien entre cette pression et l'humidité moyenne du bois n'est pas évident, sauf dans le cas de la première étape de séchage où la pression de vapeur d'eau P_i est égale à la pression de vapeur saturante de l'eau liquide à la température de l'interface.

Pour représenter simplement les trois étapes de séchage Van Meel (1958) a proposé une courbe caractéristique de séchage réduite où l'on porte en ordonnée la vitesse réduite de séchage Φ^+ et en ordonnée le paramètre adimensionnel $\varphi = \frac{\bar{x} - x^*}{\bar{x}_C - x^*}$.

Φ^+ représente le rapport de la vitesse de séchage à la vitesse maximale de séchage obtenue lors de la première étape de séchage. La vitesse maximale de séchage peut être évaluée par la relation 2, où la pression partielle de vapeur d'eau P_i est remplacée par la pression de vapeur saturante de l'eau liquide à la température de l'interface. Toutefois on préfère utiliser le couplage entre les bilans de matière et d'enthalpie pour estimer la vitesse maximale par la relation :

$$\Phi_{MAX} = \frac{h \cdot S \cdot (T - T_H)}{\Omega} \quad (3)$$

où T et T_H représentent la température sèche et humide de l'air extérieur

Ω est la chaleur latente de vaporisation de l'eau à la température T_H .

Le coefficient de transfert h peut être évalué par des corrélations adaptées à la géométrie du bois au sein du séchoir.

Dans le paramètre φ , \bar{x} , \bar{x}_C , x^* désignent respectivement les humidités moyennes du bois humide, du bois à la fin de la première étape de séchage et du bois en fin de cycle de séchage (humidité en équilibre avec l'air extérieur).

Van Meel a montré que les courbes caractéristiques étaient telles que :

$$\begin{aligned} \text{pour } 0 < \varphi < 1 & \quad \Phi^+ = f(\varphi) \\ \text{pour } \varphi \geq 1 & \quad \Phi^+ = 1 \end{aligned} \quad (4)$$

La courbe caractéristique de Van Meel nécessite la connaissance de la vitesse maximale de séchage et de l'humidité moyenne \bar{x}_C correspondant à la transition entre la première et la deuxième étape de séchage.

Le concept de courbe caractéristique de séchage a été globalement validé par les travaux de Basilico (1985), Moser (1992) Martin et al. (1995) pour des séchages convectifs hautes et très hautes températures même si au niveau de ces travaux, la première étape de séchage est rarement observée. Pour les valeurs du paramètre φ inférieures à 1, ces auteurs ont montré que la fonction pouvait être approximée par la relation linéaire $f(\varphi) \equiv \varphi$.

En dehors de la première étape de séchage où la résistance de transfert interne de l'eau peut être négligée, il est indispensable d'en tenir compte au niveau des deuxième et troisième étapes de séchage. Pour ce faire et pour intégrer aussi la résistance de transfert externe, il suffit d'exprimer la vitesse de séchage en fonction d'un coefficient global de transfert de matière K . A ce stade, la force motrice peut être une différence d'une grandeur caractéristique de l'eau en phase gazeuse ou en phase solide. Karabagli et al. (1997) et Chrusciel et al. (1998) ont opté pour une différence de l'humidité moyenne absolue du bois, dans la mesure où cette grandeur est une propriété intrinsèque du matériau que l'on souhaite sécher. Ainsi la vitesse de séchage est exprimée sous la forme :

$$\Phi = K \cdot S \cdot (\bar{x} - x^*) \quad (5)$$

où x^* est l'humidité du bois en équilibre hygroscopique avec l'air extérieur.

D'une manière générale, la résistance globale $1/K$ est la somme d'une résistance externe R_E et d'une résistance interne R_I :

$$\frac{1}{K} = R_E + R_I \quad (6)$$

Nous expliciterons plus loin les expressions proposées pour les résistances externe et interne.

Avant de terminer cette représentation rapide des travaux relatifs à l'évaluation de la vitesse de séchage, il nous faut rappeler qu'en dehors des modélisations précédentes qui expriment la vitesse de séchage de manière globale et phénoménologique, plusieurs auteurs ont décrit le phénomène de séchage du bois à partir des bilans différentiels de matière et d'énergie avec des milieux géométriques unidimensionnels [Moyné (1984), Resch et al. (1989), Moser (1992)], bidimensionnel [Perré et Degiovanni (1990), Turner (1996), Pang (1996)], voire tridimensionnel [Turner et Perré (1999)]. Ces modèles permettent de mieux préciser le rôle joué par la phase vapeur dans les deuxième et troisième étapes du séchage et ont permis de mettre en évidence la présence d'une dépression au sein du bois dans le cas d'un séchage basse température et d'une dépression puis d'une surpression dans le cas d'un séchage à une température supérieure à la température d'ébullition de l'eau. L'existence de zones en dépression dans le bois est due d'après Booker (1996) à un état métastable de l'eau sous forme liquide. Le passage de cet état métastable à un état stable favorise l'évacuation du liquide. De plus le transport du liquide entre cellule pleine et cellule vide se fait par diffusion confirmant ainsi l'influence de la température sur la cinétique de séchage.

Notre objectif dans ce qui suit est de vérifier si la courbe caractéristique réduite de séchage de Van Meel s'applique au séchage convectif basse température et de justifier l'expression phénoménologique de la vitesse de séchage donnée par la relation 5. Pour ce faire, nous avons réalisé des essais de séchage dans une boucle de séchage où peuvent être contrôlées de manière indépendante la température, l'humidité et la vitesse de la phase gazeuse externe à l'entrée du séchoir.

III DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET DES CONDITIONS OPERATOIRES DES ESSAIS DE SECHAGE

Le dispositif de séchage schématisé sur la figure 2 est constitué principalement des éléments suivants :

- Une cellule de séchage S de forme parallélépipédique en acier inoxydable d'une capacité totale de 0.4 m^3 dans laquelle sont disposés les avivés de bois à sécher,
- Une résistance chauffante, R, de 1.5 kW associée à un dispositif de régulation permettant de réguler la température de l'air à l'entrée du séchoir,
- Un humidificateur de marque Electro-VAP EL5, G, munie d'un régulateur permettant de régler l'humidité de l'air du séchoir,
- Un ventilateur de marque VENTMECA, V, permettant d'assurer un débit maximum de $2000 \text{ Nm}^3/\text{h}$ et dont le débit peut être modifié à l'aide de la vanne papillon en acier inoxydable Vp,
- Un échangeur-condenseur, C, où le fluide de refroidissement est l'eau du réseau. La puissance maximale du condenseur est de 2.5 kW,
- Le débit de vapeur condensée est contrôlé par la vanne Vd, dont l'ouverture est commandée par un servo mécanisme relié à un capteur d'humidité. Le débit d'air condensé peut être varié entre 100 et $500 \text{ Nm}^3/\text{h}$.

L'instrumentation comprend 3 sondes de température PT 100 (0 à $100 \text{ }^\circ\text{C}$), 2 sondes d'humidité relative d'air de type capacitif de marque CEMIC, 2 débitmètres de type Vortex, 1 ensemble de mesure de l'humidité du bois constitué de trois capteurs résistifs. Le séchoir est équipé d'une centrale d'acquisition pour stocker les mesures, commander la marche et l'arrêt de l'installation ainsi que pour traiter les grandeurs mesurées.

Cinq grandeurs sont suivies au cours du séchage : la température de l'air, l'humidité relative de l'air, le débit d'air, la masse d'eau condensée et la masse totale du bois. Cette dernière est obtenue par l'intermédiaire de trois capteurs de force en contact avec trois tiges en acier inoxydable solidaires de la plaque sur laquelle est disposée la pile du bois. Les trois capteurs de température sont placés aux points 1, 2 et 3, les deux humidimètres aux points 1 et 4 et les deux débitmètres aux points 3 et 4.

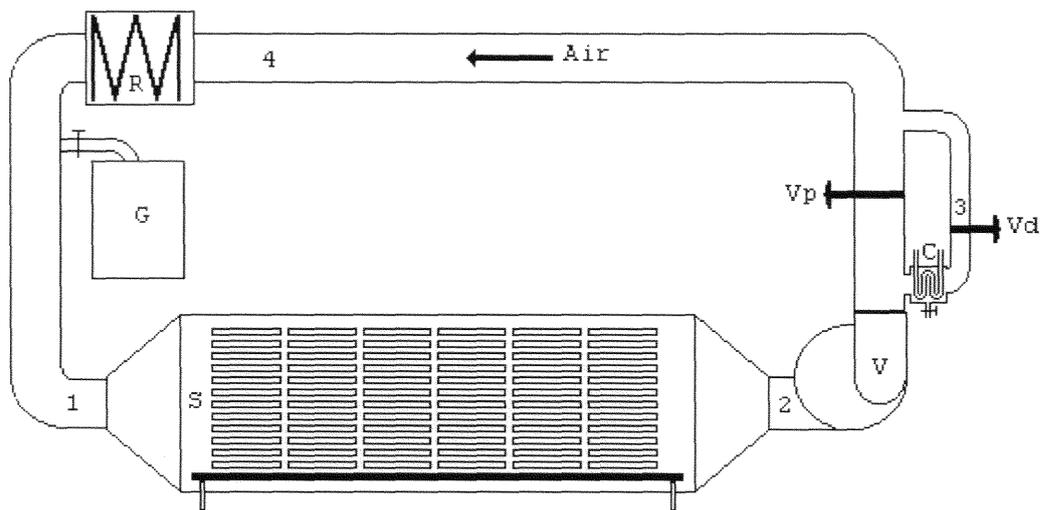


Figure 2: Dispositif de séchage

- S: cellule de séchage
- R: résistance chauffante
- G: humidificateur
- V: ventilateur
- Vp: vanne papillon
- C: échangeur-condenseur
- Vd: vanne avec servo mécanisme
- 1, 2 et 3: capteurs de température
- 1 et 4: humidimètres
- 3 et 4: débitmètres

Les avivés placés dans la cellule de forme parallélépipédique ont une longueur de 750 mm et une largeur de 150 mm. Les épaisseurs des avivés ont été variées entre 18 et 50 mm. Le nombre d'avivés placés dans l'enceinte, l'épaisseur des baguettes, varient d'un essai à un autre en fonction de l'épaisseur des avivés et de la vitesse moyenne de l'air extérieur au sein de la pile. Cette dernière est restée comprise entre 1.5 et 6.1 m/s.

Les cycles de séchage ont porté sur deux essences, à savoir un résineux, le sapin *Abies sp.*, et un feuillu, le hêtre *Fagus sylvatica*. Le séchage des avivés a été effectué sur des bois verts mais aussi sur des bois séchés et réhumidifiés. Pour les bois réhumidifiés nous avons éliminé les avivés présentant trop de défauts visibles (fentes, fissures, déformations). Dans ces conditions, nous avons vérifié que les résultats obtenus étaient similaires à ceux atteints avec les avivés débités sur du bois vert (sèché à l'air libre). Nous confirmons ainsi les observations rapportées précédemment par Karabagli (1998) et Chrusciel (1998).

Les vingt un cycles réalisés ont permis de compléter l'ensemble des essais effectués sur la même boucle de séchage (20 cycles) par Chrusciel (1998) afin de mieux préciser l'influence de certains paramètres opératoires sur le coefficient de transfert global K . Rappelons que le dispositif expérimental permet de réaliser des cycles de séchage dans des conditions où les trois paramètres température, humidité et vitesse de l'air extérieur peuvent être contrôlés de manière indépendante.

De plus lors des séchages à basse température (température inférieure à 70 °C) et avec des humidités initiales des avivés inférieures à 100 %, les différences de température, d'humidité relative et de vitesse de l'air extérieur entre l'entrée et la sortie du séchoir sont faibles ($\Delta T_{\max} < 2,3$ °C). Dans ces conditions les paramètres d'entrée peuvent être considérés comme représentatifs des conditions de séchage de l'ensemble de la pile de bois.

IV RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

Dans ce qui suit, nous ne présenterons pas l'ensemble des cycles de séchage. Nous nous limiterons aux cycles où seul un des trois paramètres : épaisseur des avivés, vitesse du fluide extérieur et température du fluide extérieur a été modifié. Les courbes de séchage correspondantes sont données sur les figures 3, 4 et 5.

Les paramètres géométriques des piles et les conditions opératoires des neuf cycles de séchage sont rappelés respectivement dans les tableaux 1 et 2.

Tableau 1 : Géométrie des piles

cycles	Nombre d'avivés par rangée horizontale	Nombre total de avivés	dimensions des avivés			dimensions des baguettes		S (m ²)
			e (m)	a (m)	l (m)	e _b (m)	a _b (m)	
1	9	72	0,018	0,15	0,75	0,016	0,014	16,2
2	8	56	0,027	0,15	0,75	0,020	0,020	12,7
3	9	45	0,041	0,15	0,75	0,020	0,025	10,4
4	9	36	0,041	0,15	0,75	0,020	0,025	8,3
5	9	45	0,041	0,15	0,75	0,020	0,025	10,4
6	9	45	0,041	0,15	0,75	0,020	0,025	10,4
7	8	56	0,027	0,15	0,75	0,016	0,020	15,2
8	8	56	0,027	0,15	0,75	0,016	0,020	15,2
9	8	56	0,027	0,15	0,75	0,016	0,020	15,2

Tableau 2 : Conditions opératoires des cycles de séchage

cycles	Mo (kg)	x _{ini} (%)	v (m.s ⁻¹)	T (°C)	HR (%)	T _H (°C)	x* (%)
1	61,7	60	2,8	69,2	70,7	61,4	11,4
2	64,2	103	3,3	69,2	68,2	61,6	11,6
3	75,6	69	3,1	70,3	70,1	62,4	11,2
4	61,7	60	1,5	70,3	71,1	62,6	11,4
5	81,8	61	4,7	70,4	70,2	62,5	11,2
6	83,2	74	6,1	70,6	70,6	62,7	11,3
7	65,9	120	3,5	51,5	70,8	44,7	13,2
8	66,0	94	3,5	60,0	71,0	52,9	12,4
9	66,2	65	3,5	80,3	70,7	72,2	10,3

Les cycles 1 à 3 sont relatifs à la variation de l'épaisseur de l'avivé, les cycles 4 à 6 sont relatifs à la variation de la vitesse du fluide extérieur et les cycles 7 à 9 sont relatifs à la variation de la température du fluide extérieur.

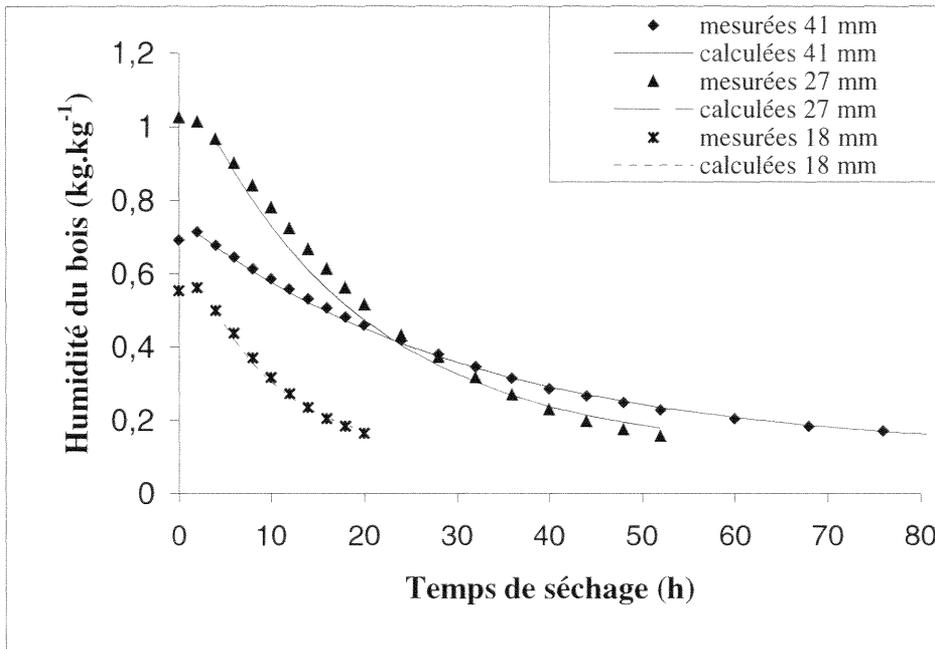


Figure 3 : Cycles de séchage 1, 2 et 3. Influence de l'épaisseur de l'avivé

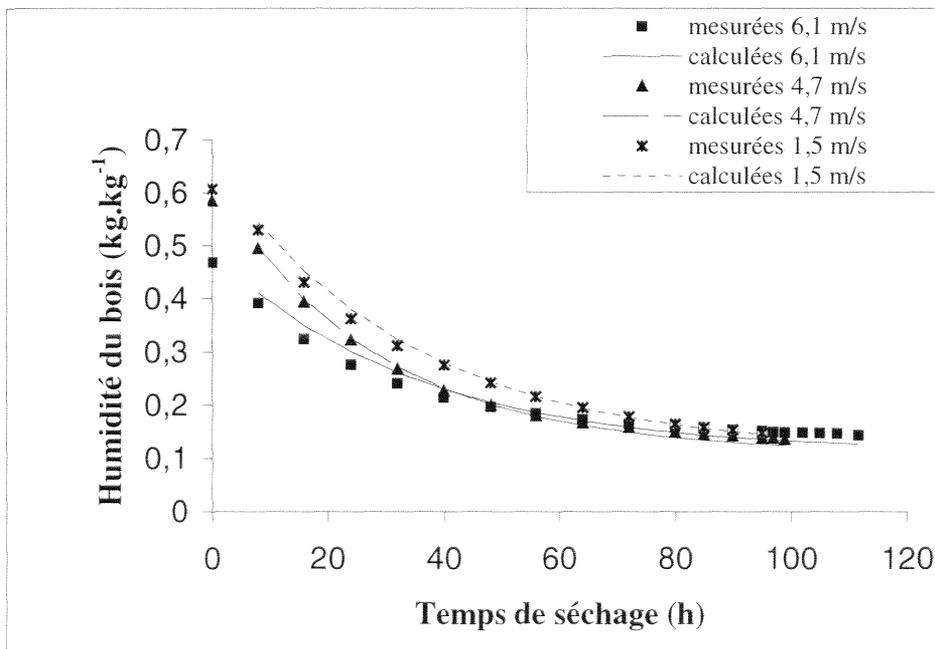


Figure 4 : Cycles de séchage 4, 5 et 6. Influence de la vitesse du fluide extérieur

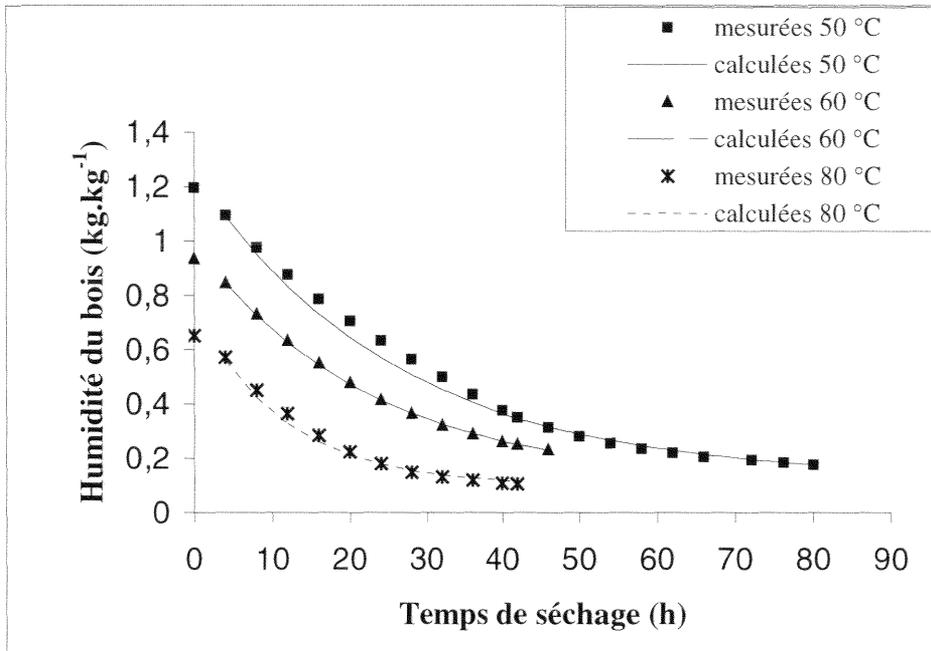


Figure 5 : Cycles de séchage 7, 8 et 9. Influence de la température du fluide extérieur.

Sur ces neuf cycles de séchage, nous allons d'une part essayer d'appliquer la modélisation proposée par Van Meel et d'autre part justifier la modélisation phénoménologique préconisée par Karabagli et al. (1997) et Chrusciel et al. (1998). Connaissant les variations de l'humidité absolue moyenne des avivés au cours de temps, il est possible d'évaluer numériquement la dérivée de l'humidité absolue ($-d\bar{x}/dt$) et de tracer la courbe donnant cette dérivée en fonction de $(\bar{x}-x^*)$. Rappelons que x^* représente l'humidité absolue du bois en équilibre avec l'humidité de l'air extérieur. Dans le cas de nos cycles de séchage x^* est constant. Les valeurs de x^* ont été évaluées à l'aide des relations proposées par Nadeau et Puigali (1994) rappelées dans l'annexe 1. Les valeurs obtenues pour les neuf cycles sont données dans le tableau 2. En vertu de la relation 1 ($-d\bar{x}/dt$) est proportionnel à la vitesse de séchage. Les résultats obtenus sont reportés sur les figures 6, 7 et 8.

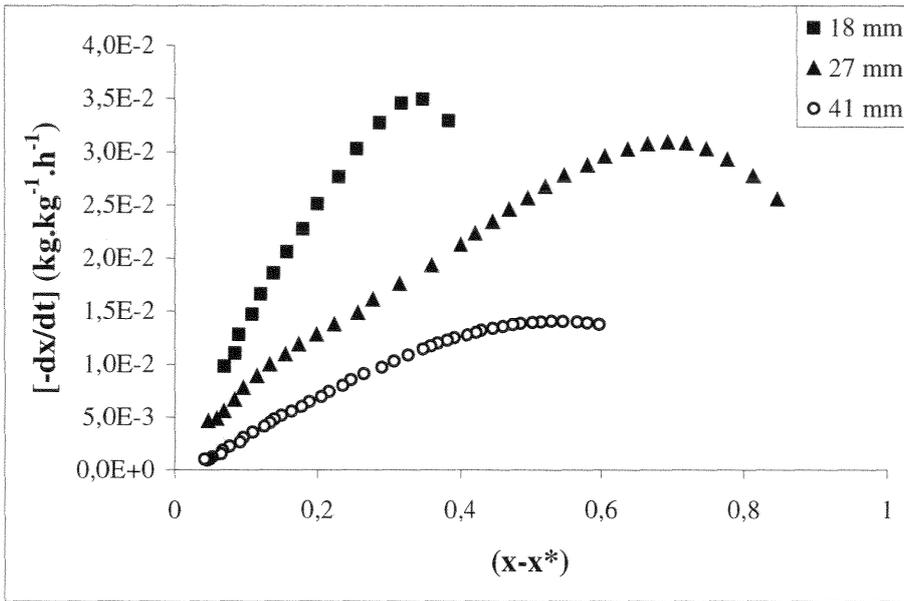


Figure 6 : Variation de $(-d\bar{x}/dt)$ en fonction de $(\bar{x}-x^*)$. Influence de l'épaisseur de l'avivé.

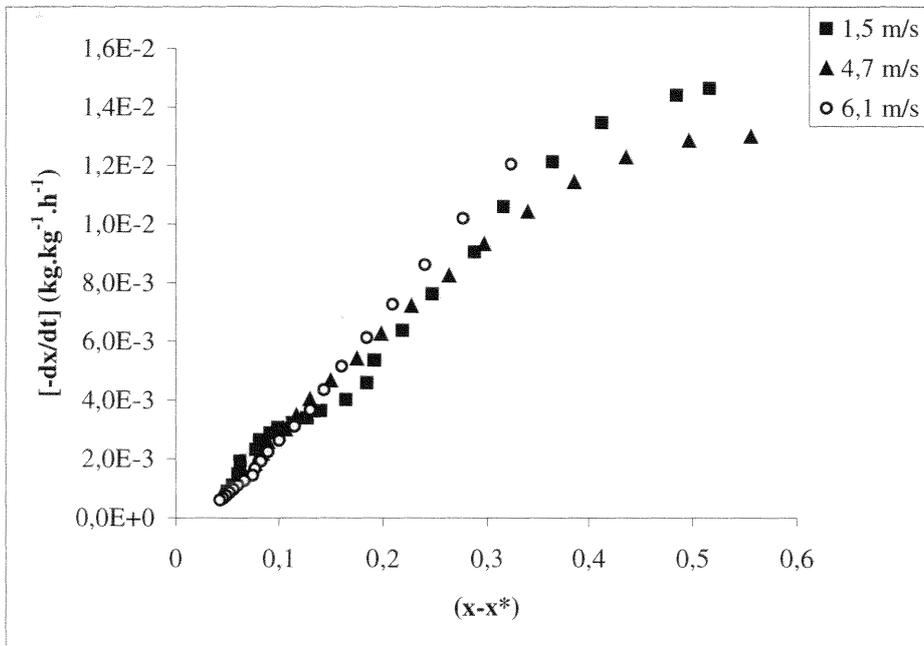


Figure 7 : Variation de $(-d\bar{x}/dt)$ en fonction de $(\bar{x}-x^*)$. Influence de la vitesse du fluide extérieur

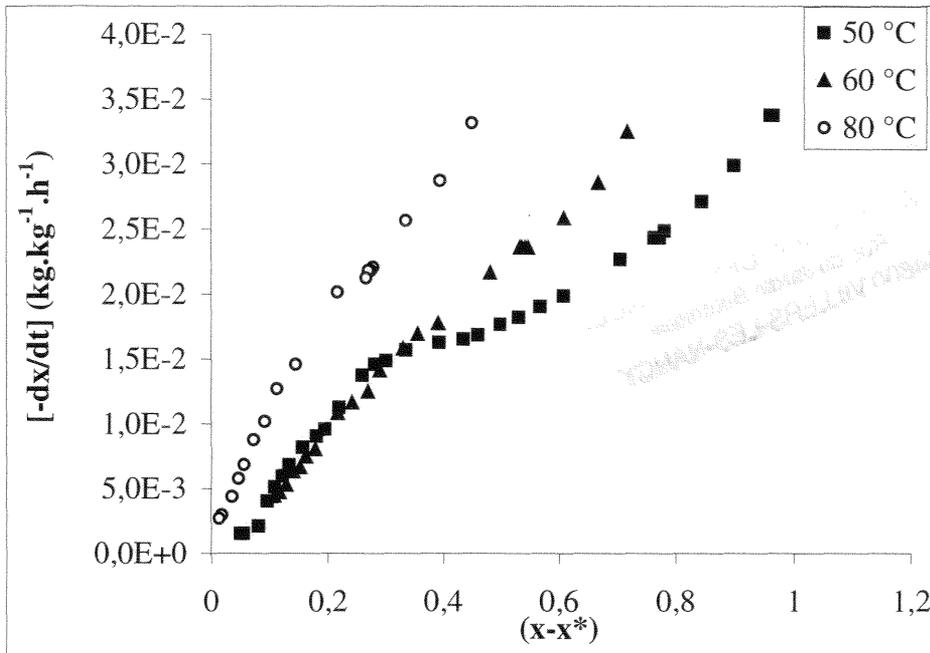


Figure 8 : Variation de $(-d\bar{x}/dt)$ en fonction de $(\bar{x}-x^*)$. Influence de la température du fluide extérieur

Les courbes précédentes ne font pas apparaître de zone où la vitesse de séchage est constante même dans le cas où les humidités initiales sont de l'ordre de 100 %. La première étape de séchage n'est donc jamais observée. Cette constatation est similaire à celle de plusieurs auteurs (Basilico (1985), Moser (1992), Martin et al. (1995)) pour lesquels cette absence est liée aux faibles valeurs de l'humidité initiale. En revanche, on peut affirmer que la vitesse de séchage diminue au cours de séchage comme le prévoient les deuxième et troisième étapes de séchage, et en première approximation on constate que la relation entre la vitesse de séchage et la force motrice $(\bar{x}-x^*)$ est sensiblement linéaire. On peut dire que pour des conditions opératoires fixées (température, humidité et vitesse du fluide extérieur), le coefficient global de transfert de matière K (relation 5) est sensiblement constant, ce qui justifie à posteriori la loi phénoménologique proposée par Karabagli et al. (1997) pour exprimer la vitesse de séchage. Notons cependant que la relation n'est pas strictement linéaire dans tout le domaine du cycle de séchage et que l'on observe généralement une diminution du coefficient de transfert global K pour les humidités absolues élevées. Plus précisément, les courbes donnant la vitesse de séchage peuvent être représentées par deux segments de droite dont l'intersection apparaît à une humidité moyenne \bar{x} voisine de la saturation des fibres.

Dans le domaine hygroscopique, le transfert de l'eau à basse température se fait uniquement par diffusion et il est logique que le coefficient de transfert global K soit constant. En revanche, pour les humidités supérieures à la saturation des fibres, la diminution du coefficient de transfert global K est probablement liée à la dépression créée à l'intérieur de l'avivé qui s'oppose au transport diffusif de l'eau liée et de l'eau vapeur.

Dans les conditions opératoires des cycles de séchage, la pression totale au sein du bois ne devient jamais supérieure à la pression extérieure et l'évacuation de l'eau capillaire n'est pas favorisée. Elle constitue plutôt une résistance supplémentaire aux transports diffusifs.

N'ayant pas observé de zone de séchage où la vitesse de séchage est constante, pour vérifier le formalisme proposé par Van Meel, nous avons calculé la valeur maximale de $(-d\bar{x}/dt)$ à l'aide de la relation 7 déduite de la relation 3 en divisant la vitesse de séchage Φ_{MAX} par la masse anhydre M_o de la pile du bois, soit :

$$\left(-\frac{d\bar{x}}{dt}\right)_{MAX} = \left(\frac{h \cdot S}{M_o}\right) \cdot \left(\frac{T - T_H}{\Omega}\right) \quad (7)$$

Le coefficient de transfert de chaleur h a été calculé à l'aide de la relation de Sieder et Tate (Salin, 1996) appliquée aux écoulements à l'intérieur d'une conduite cylindrique non circulaire, soit :

$$\left(\frac{h \cdot D_h}{\lambda}\right) = 0,023 \cdot \left(\frac{\rho \cdot v \cdot D_h}{\mu}\right)^{0,8} \cdot \left(\frac{\mu \cdot c_p}{\lambda}\right)^{0,3} \quad (8)$$

où D_h est le diamètre hydraulique de la cellule de séchage. Les calculs des grandeurs physico-chimiques (conductivité thermique, λ , viscosité dynamique, μ , chaleur spécifique, c_p) de l'air humide sont données dans l'annexe 2. Les valeurs du diamètre hydraulique, du coefficient de transfert h et de $(-d\bar{x}/dt)_{MAX}$ pour les neuf cycles de séchage examinés sont reportés dans le tableau 3.

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
 Rue du Jardin Botanique
 54600 VILLERS-LES-NANCY

Tableau 3 : Evaluation de la vitesse de séchage maximale

cycles	D_h (m)	Re	Pr	Nu	h ($w.m^{-2}.^{\circ}C^{-1}$)	$(-dx/dt)_{MAX} \times 10^5$ ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)	x_c (%)
1	0,0377	5223,7	0,6970	19,5	15,0	5,00	57,7
2	0,0310	4994,0	0,6958	18,8	17,8	5,77	91,6
3	0,0360	5441,9	0,6956	20,1	16,5	5,61	107,5
4	0,0579	4309,5	0,6957	16,7	8,5	2,80	56,3
5	0,0360	8226,9	0,6956	28,0	22,9	7,81	146,5
6	0,0360	10817,9	0,6956	34,8	28,6	9,63	117,2
7	0,0310	5571,1	0,7028	20,5	18,5	5,24	138,3
8	0,0310	5448,2	0,6976	20,1	18,7	5,58	116,4
9	0,0310	5038,1	0,7187	19,1	18,6	6,53	78,6

Connaissant les valeurs maximales de $(-d\bar{x}/dt)_{MAX}$ il est désormais possible tracer les courbes donnant la vitesse de séchage réduite $\left(-\left(\frac{d\bar{x}}{dt} \right) / \left(\frac{d\bar{x}}{dt} \right)_{MAX} \right) = \Phi^+$, en fonction de $(\bar{x}-x^*)$. Les courbes des figures 9, 10 et 11, montrent que la pente des droites dépend notablement des trois paramètres étudiés, à savoir, l'épaisseur des avivés, la vitesse et la température du fluide gazeux extérieur.

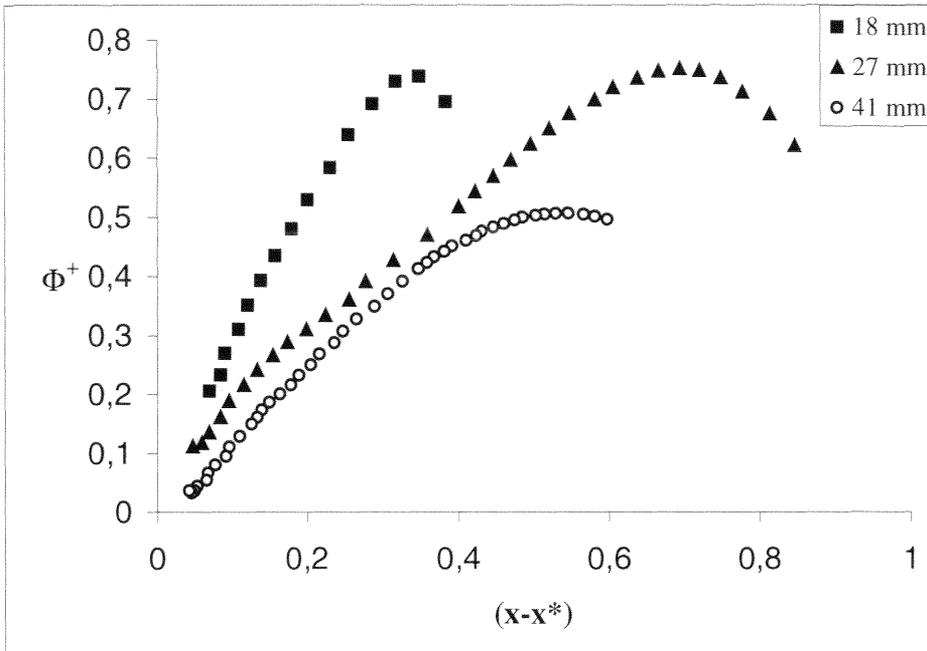


Figure 9 : Variation de la vitesse de séchage réduite en fonction de $(\bar{x} - x^*)$. Influence de l'épaisseur de l'avivé

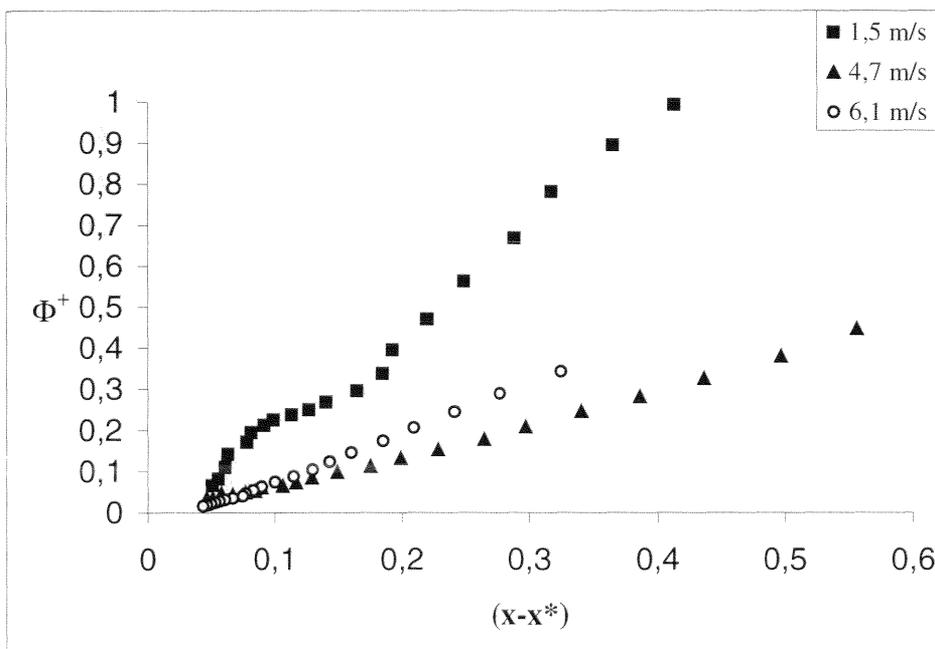


Figure 10 : Variation de la vitesse de séchage réduite en fonction de $(\bar{x} - x^*)$. Influence de la vitesse du fluide extérieur

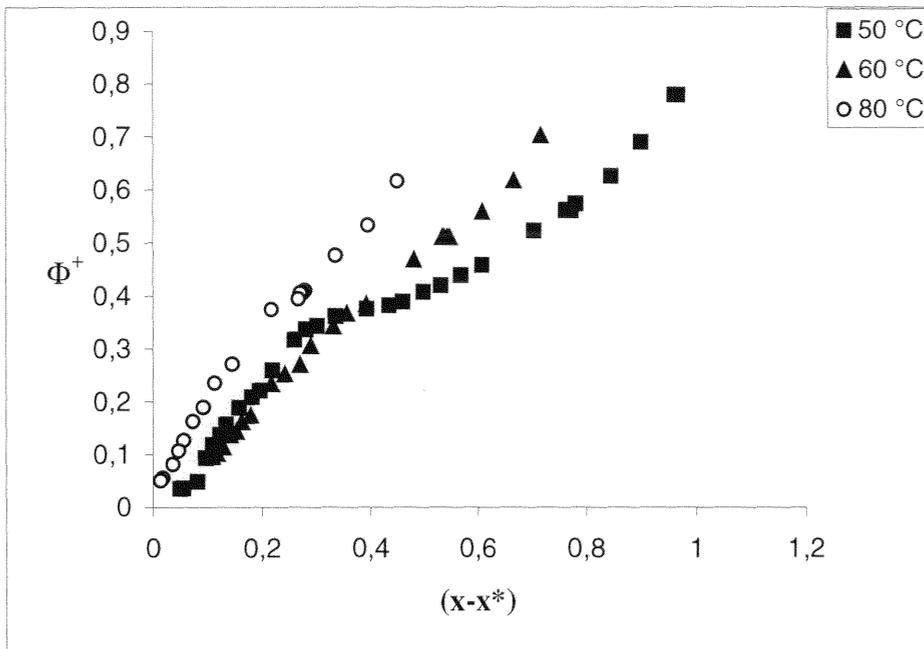


Figure 11 : Variation de la vitesse de séchage réduite en fonction de $(\bar{x}-x^*)$. Influence de la température du fluide extérieur

Par extrapolation de ces relations linéaires à la valeur limite de Φ^+ égale à 1, on obtient la valeur critique de l'humidité moyenne du bois, soit, \bar{x}_C . Les valeurs données dans le tableau 3, montrent que l'humidité critique dépend de l'ensemble des paramètres opératoires étudiés et qu'elles se situent dans un intervalle d'humidités absolues comprises entre 56,3 et 146,5 %.

Les valeurs de l'humidité critique ne peuvent pas être connues à priori, la représentation de Van Meel ne conduit pas à une courbe caractéristique de séchage unique. Nous ne retiendrons de ces représentations que l'existence d'une relation sensiblement linéaire entre la vitesse de séchage et la force motrice $(\bar{x}-x^*)$, confirmant à posteriori l'hypothèse préconisée par Karabagli et al. (1997) pour le coefficient de transport global K, à savoir, un coefficient de transfert de matière constant sur la durée d'un cycle de séchage dont les conditions opératoires température, humidité et vitesse de l'air extérieur sont maintenues constantes.

Pour chacun des cycles de séchage en écrivant que la vitesse de séchage est de la forme $\Phi = K \cdot S \cdot (\bar{x} - x^*)$, le bilan de matière d'eau au sein de la pile de bois, soit :

$$-M_o \cdot \left(\frac{d\bar{x}}{dt} \right) = K \cdot S \cdot (\bar{x} - x^*) \quad (9)$$

peut être intégrée simplement dans le cas où l'humidité à l'équilibre x^* est constante. On obtient :

$$-\text{Ln} \cdot \left(\frac{\bar{x} - x^*}{\bar{x}_c - x^*} \right) = \left(\frac{K \cdot S}{M_o} \right) \cdot t \quad (10)$$

ou

$$(\bar{x} - x^*) = (\bar{x}_i - x^*) \exp - \left[\left(\frac{K \cdot S}{M_o} \right) \cdot t \right] \quad (11)$$

Pour chaque cycle de séchage, il est possible de trouver la meilleure valeur du coefficient de transfert global K permettant de représenter au mieux la courbe de séchage expérimentale en minimisant une fonction d'erreur relative construite entre les valeurs expérimentales et calculées, soit :

$$E = \frac{100}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{|\bar{x}_{\text{mesure}} - \bar{x}_{\text{calculé}}|}{\bar{x}_{\text{mesure}}} \right) \quad (12)$$

Les valeurs optimisées du coefficient de transfert K pour les neuf cycles examinés précédemment sont données dans le tableau 4. Pour l'ensemble des cycles de séchage effectués par Chruscziel (1998) et nous même sur le séchoir pilote, les conditions opératoires des cycles et les valeurs des conductances obtenues par optimisation sont données dans l'annexe 3.

Tableau 4 : Valeurs optimisées du coefficient de transfert de matière global

cycle	Mo (kg)	S (m ²)	x _{mi} (%)	K x 10 ⁵ (kg.m ⁻² .s ⁻¹)	E (%)
1	61,7	16,24	60	12,5	2,8
2	64,2	12,71	103	7,48	6,8
3	75,6	10,38	69	6,39	1,8
4	61,7	8,32	60	6,17	1,9
5	81,8	10,38	61	8,07	3,2
6	83,2	10,38	74	6,53	6,7
7	65,9	15,20	120	4,73	4,6
8	66,0	15,20	94	5,48	0,8
9	66,2	15,20	65	10,9	6,3

Sur les figures 3, 4 et 5, nous avons porté les humidités calculées avec la valeur optimisée du coefficient de transfert. Sur l'ensemble des cycles l'écart relatif moyen reste inférieur à 12 % (tableau 4 et annexe a.3), ce qui permet de justifier le choix de la modélisation et l'hypothèse d'un coefficient de transfert global constant pour des conditions opératoires données.

Toutefois, comme l'humidité critique de la courbe caractéristique de Van Meel, le coefficient de transfert global K dépend des conditions opératoires, ces dernières n'ayant pas la même influence sur la résistance interne et externe.

Conformément aux analyses de Chrusciel et al. (1998) et aux observations de la littérature, on peut supposer que :

- la résistance interne R_I est proportionnelle à l'épaisseur de l'avivé
- la résistance externe R_E dépend de la vitesse du fluide extérieur selon une loi du type puissance, soit v^{-n} où l'exposant n est compris entre 0,5 et 1.

D'autre part Chrusciel et al. (1998) ont supposé que l'influence de la température étant similaire pour les deux résistances et que l'humidité de l'air intervient seulement sur la résistance externe.

Par suite, le coefficient de transfert de matière global est exprimé en fonction des paramètres opératoires sous la forme générale suivante :

$$\frac{1}{K} = a_0 \cdot \exp\left(\frac{c_0}{T}\right) \cdot e + b_0 \cdot \exp\left(\frac{c_0}{T}\right) \cdot v^{-n} \cdot \exp\left[\frac{(1-HR)}{(\bar{x}_{PSF} - x^*)}\right] \quad (13)$$

Dans la relation 13, HR est l'humidité relative de l'air extérieur et \bar{x}_{PSF} est l'humidité absolue du bois à la saturation des fibres prise égale, à 0,3. Avec l'argument choisi $[(1-HR)/(\bar{x}_{PSF} - x^*)]$, pour les températures étudiées $\{\exp[(1-HR)/(\bar{x}_{PSF} - x^*)]\}$ décroît de façon monotone en fonction de l'humidité relative de l'air d'une valeur 28 pour HR=0 vers une valeur inférieure à 5 pour les humidités relatives supérieures à 90 %. Dans le domaine hygroscopique du bois, l'importance relative de la résistance externe vis à vis de la résistance interne est d'autant plus grande que l'humidité relative de l'air extérieur est faible.

En fixant l'exposant n à la valeur 0,8, les trois coefficients de la relation 13, a_0 , b_0 et c_0 ont été recherchés par optimisation à partir des valeurs optimisées des coefficients de transfert en minimisant une fonction d'erreur relative entre les valeurs optimisées et les valeurs calculées par l'intermédiaire de la relation 13.

Les valeurs des coefficients obtenues pour optimisation sont :

$$a_0 = 0.12 \text{ (m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}\text{)}$$

$$b_0 = 23.9 \text{ (m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}\text{)}$$

$$c_0 = 2683 \text{ (K}^{-1}\text{)}$$

La figure 12 compare les valeurs calculées aux valeurs optimisées. La relation 13 représente l'ensemble des déterminations expérimentales avec une incertitude relative moyenne égale à 15,3 % (et un écart type égale à 11). Cette corrélation est valable pour les trois essences étudiées (sapin, épicéa et hêtre) et elle est tout à fait satisfaisante pour un cycle de séchage. La figure 13 est un exemple de cycle de séchage comportant deux conditions opératoires consécutives de séchage. Les humidités expérimentales sont correctement représentées par l'expression de la vitesse de séchage avec un coefficient de transfert de matière global variable.

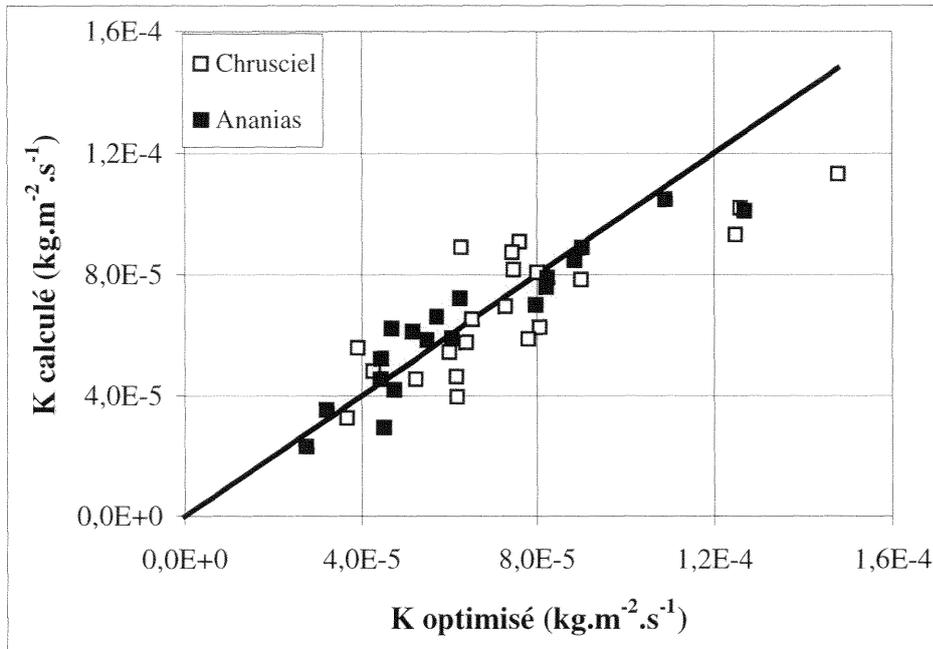


Figure 12 : Comparaison entre les valeurs optimisées et les valeurs calculées à l'aide de la relation 13 du coefficient de transfert de matière global.

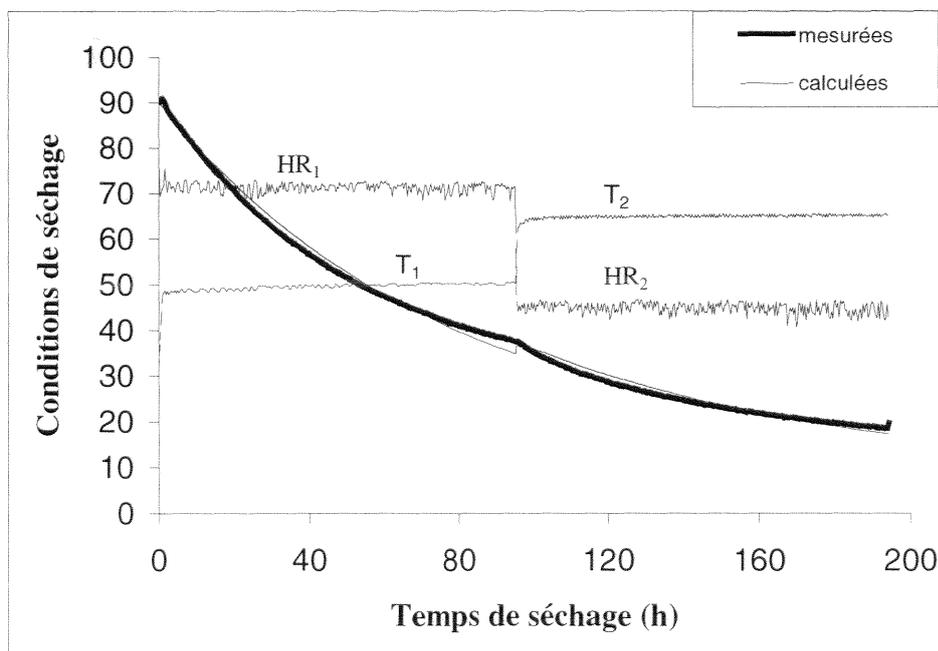


Figure 13 : Application du modèle de cinétique de séchage à un cycle de séchage comportant deux conditions opératoires consécutives de séchage.

V CONCLUSIONS

Pour un séchage convectif à des températures de séchage inférieures à 70 °C, une vitesse de séchage constante pour des humidités initiales du bois inférieures à 100 % n'est jamais observée. La résistance interne n'est pas nulle et son influence est accentuée par la dépression créée à l'intérieur du bois qui semble se maintenir jusqu'à une humidité voisine du point de saturation des fibres. Au-delà, dans le domaine hygroscopique les transports d'eau sont purement diffusionnels avec un coefficient de transfert global constant pour des conditions opératoires données.

Globalement pour les cycles de séchage étudiés la vitesse de séchage peut être exprimée de manière phénoménologique sous la forme :

$$\Phi = K \cdot S \cdot (\bar{x} - x^*) \quad (14)$$

où le coefficient de transfert de matière global K est donné en fonction des conditions opératoires par la relation :

$$\frac{1}{K} = 0,12 \cdot \exp\left(\frac{2683}{T}\right) \cdot e + 23,9 \cdot \exp\left(\frac{2683}{T}\right) \cdot v^{-0,8} \cdot \exp\left[\frac{(1-HR)}{(\bar{X}_{PSF} - x^*)}\right] \quad (15)$$

Le formalisme validé dans le cas des cycles de séchage de laboratoire réalisées sur trois essences a été confirmé sur un cycle de séchage industriel réalisé dans un séchoir convectif basse température (d'une capacité de 50 m³) contenant 33 m³ de plots de hêtre de 50 mm d'épaisseur.

LITERATURE CITEE

BASILICO, C. 1985. Le séchage convectif à haute température du bois massif. Etude des mécanismes de transfert de chaleur et de masse. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France

BRAMHALL, G. 1979a. Mathematical model for lumber drying. I - Principles involved. Wood Science, 12 (1):14-21.

BRAMHALL, G. 1979b. Mathematical model for lumber drying. II. The model. Wood Science, 12 (1): 22-31.

BOOKER, R.E. 1996. New theories for liquid water flow in wood. 5th IUFRO International Wood Drying Conference: Quality Wood Drying through Process Modelling and Novel Technologies : 437-445.

CHRUSCIEL, L.; MOUGEL, E.; ZOULALIAN, A.; MEUNIER, T. 1997. Caractérisation du transfert d'eau dans un séchoir convectif basse température. Influence des paramètres opératoires sur le coefficient global de transfert de matière. IIIe Colloque Interuniversitaire Franco-Québécois Thermique des Systèmes à Température Modérée. 1:367-372.

CHRUSCIEL, L. 1998. Etude de l'association d'une colonne d'absorption à un séchoir convectif à basse température. Influence de l'absorbeur sur la cinétique et la qualité du séchage. Thèse de doctorat, Institut Nationale Polytechnique de Lorraine, Université Henri Poincaré, Nancy, France

CHRUSCIEL, L.; MOUGEL, E.; ZOULALIAN, A.; MEUNIER, T. 1999. Characterisation of water transfer in a low temperature convective wood drier : influence of the operating parameters on the mass transfer coefficients. Holz als Roh- und Werkstoff. 57:439-445

KARABAGLI, A.; MOUGEL, E.; CHRUSCIEL, L.; ZOULALIAN, A. 1997. Study of a low temperature convective wood drier. Influence of some operating parameters on drier modelling and on the quality of dried wood. Holz als Roh- und Werkstoff. 55:221-226..

KARABAGLI, A. 1998. Etude technologique et analyse phénoménologique d'un séchoir à bois convectif basse et moyenne température. Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré, Nancy, France..

- MARTIN, M.; PERRE, P.; MOSER, M. 1995.** La perte de température à travers la charge: Intérêt pour le pilotage d'un séchoir à bois à haute température. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 38 (6): 1075-1088.
- MOSER, M. 1992.** Le séchage convectif à haute température. Observation des mécanismes à deux échelles: La planche et la pile. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France.
- MOYNE, C. 1984.** Contribution à l'étude du transfert simultané de chaleur et de masse au cours du séchage sous vide d'un bois résineux. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France.
- NADEAU, J.P. ; PUIGGALI, J.R. 1995.** Séchage : des processus physiques aux procédés industriels. Lavoisier, Paris, France.
- PANG, S. 1996.** Moisture content gradient in a softwood board during drying : simulation from a 2-D model and measurement. *Wood Science and Technology* 39 :165-178.
- PERRE, P. 1987.** Le séchage convectif de bois résineux: Choix, validation et utilisation d'un modèle. Thèse de doctorat, Université Paris VII, Paris, France
- PERRE, P.; DEGIOVANNI, A. 1990.** Simulation par volumes finis des transferts couplés en milieux poreux anisotropes : Séchage du bois à basse et à haute température. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 33 (11): 2463-2478.
- PERRE, P.; MOSER, M.; MARTIN, M. 1993.** Advances in transport phenomena during convective drying with superheated steam and moist air. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 36 (11): 2725-2746
- PERRE, P. 1996.** The numerical modelling of physical and mechanical phenomena involved in wood drying: An excellent tool for assisting with the study of new processes. 5th IUFRO International Wood Drying Conference: Quality Wood Drying through Process Modelling and Novel Technologies.11-38.
- .RESCH, H. ; KANG, H. ; HOAG, M.L. 1989.** Drying douglas-fir lumber a computer simulation. *Wood and fiber science* 21(3) :207-218.
- SALIN, J.G. 1996.** Prediction of heat and mass transfer coefficient for individual boards and board surfaces. A review. 5th IUFRO International Wood Drying Conference: Quality Wood Drying through Process Modelling and Novel Technologies : 49-58.
- TURNER, I. W. 1996.** A two-dimensional orthotropic model for simulating Wood Drying Processes. *Applied Mathematical Modelling* 20: 60-81.

TURNER, I. W. ; PERRE, P. 1999. A 3D version of Transpore : A comprehensive heat and mass transfer computational model for simulating the drying of wood. 6th IUFRO International Wood Drying Conference. Wood drying research and technology for sustainable forestry beyond 2000 :213-222.

VAN MEEL, D.A. 1958. Adiabatic convection batch drying with recirculation of Air. Chemical Engineering Science 9(1958):36-44.

ANNEXES

Part A:

**MODELISATION DE LA VITESSE DE SECHAGE DANS UN SECHOIR A BOIS
CONVECTIF BASSE TEMPERATURE**

Annexe a.1.- Evaluation de l'humidité du bois à l'équilibre.

Pour calculer l'humidité d'équilibre du bois x^* sont utilisées les relations de Nadeau et Puigalli (1994), soit :

$$x^* = \frac{\ln Q}{100 \cdot \ln B} \quad (\text{a1})$$

avec

$$Q = \frac{C - \ln HR}{A} \quad (\text{a2})$$

et

$$A = -2,86 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 - 1,075 \cdot 10^{-2} \cdot T + 10,238 \quad (\text{a3})$$

$$B = -5,414 \cdot 10^{-4} \cdot T + 1,0134 \quad (\text{a4})$$

$$C = 4,97 \cdot 10^{-6} \cdot T^2 - 2,667 \cdot 10^{-3} \cdot T + 0,3546 \quad (\text{a5})$$

HR est l'humidité relative de l'air et T la température de l'air en (K) calculée comme,

$$T = \frac{T_{\text{entrée}} + T_{\text{sortie}}}{2} + 273,15 \quad (\text{a6})$$

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

Annexe a.2.- Evaluation des grandeurs physicochimiques de l'air humide

Calcul de la viscosité cinématique : La viscosité cinématique ν en (m²/s) est calculée comme

$$\nu = \frac{\mu}{\rho} \quad (\text{a7})$$

avec,

$$\mu = (c_1 \cdot T^4 + c_2 \cdot T^3 + c_3 \cdot T^2 + c_4) \cdot 10^{-8} \quad (\text{a8})$$

et,

$$c_1 = 3,9543 \cdot 10^{-8} \cdot \chi^4 + 6,4272 \cdot 10^{-8} \cdot \chi^3 - 1,5426 \cdot 10^{-8} \cdot \chi^2 - 9,6937 \cdot 10^{-9} \cdot \chi + 5,4182 \cdot 10^{-10} \quad (\text{a9})$$

$$c_2 = 1,0591 \cdot 10^{-5} \cdot \chi^4 - 1,5096 \cdot 10^{-5} \cdot \chi^3 - 3,7079 \cdot 10^{-6} \cdot \chi^2 + 3,675 \cdot 10^{-6} \cdot \chi - 4,0088 \cdot 10^{-6} \quad (\text{a10})$$

$$c_3 = -2,7685 \cdot 10^{-3} \cdot \chi^4 + 4,3675 \cdot 10^{-3} \cdot \chi^3 + 1,2388 \cdot 10^{-3} \cdot \chi^2 + 1,5312 \cdot 10^{-3} \cdot \chi - 4,3016 \cdot 10^{-3} \quad (\text{a11})$$

$$c_4 = 0,5738 \cdot \chi^4 - 1,7085 \cdot \chi^3 + 1,0763 \cdot \chi^2 - 1,3033 \cdot \chi + 4,9683 \quad (\text{a12})$$

$$c_5 = -46,3241 \cdot \chi^4 + 310,7252 \cdot \chi^3 - 1036,1348 \cdot \chi^2 - 60,2464 \cdot \chi + 1716,8794 \quad (\text{a13})$$

avec χ la fraction molaire de vapeur que se calcule comme,

$$\chi = \frac{0,622 \cdot w}{1 + 0,622 \cdot w} \quad (\text{a14})$$

avec w l'humidité absolue de l'air en (kg vapeur/kg air sec), qui se calcule comme

$$w = \frac{18 \cdot p_{\text{sat}} \cdot \text{HR}}{29 \cdot (1 - p_{\text{sat}} \cdot \text{HR})} \quad (\text{a15})$$

P_{sat} , pression de vapeur de saturation en (at), calculée selon Bramhall (1979) comme

$$P_{\text{sat}} = \exp \left(\frac{18,986 - \frac{4052}{T - 37,258}}{1013,25} \right) \quad (\text{a16})$$

T = température de l'air en (K)

Calcul de la conductivité thermique : La conductivité thermique λ est calculée comme,

$$\lambda = (c_6 \cdot T^4 + c_7 \cdot T^3 + c_8 \cdot T^2 + c_9 \cdot T + c_{10}) \cdot 4,182 \cdot 10^{-5} \quad (\text{a17})$$

avec λ en (w/m.°C), et,

$$c_6 = 8,0277 \cdot 10^{-8} \cdot \chi^4 - 1,8619 \cdot 10^{-7} \cdot \chi^3 + 1,5128 \cdot 10^{-7} \cdot \chi^2 - 5,2651 \cdot 10^{-8} \cdot \chi + 3,5596 \cdot 10^{-9} \quad (\text{a18})$$

$$c_7 = -4,3387 \cdot 10^{-5} \cdot \chi^4 + 1,0078 \cdot 10^{-4} \cdot \chi^3 - 8,1845 \cdot 10^{-5} \cdot \chi^2 + 2,7477 \cdot 10^{-5} \cdot \chi - 1,4563 \cdot 10^{-6} \quad (\text{a19})$$

$$c_8 = 8,1396 \cdot 10^{-3} \cdot \chi^4 - 1,4189 \cdot 10^{-2} \cdot \chi^3 + 1,2433 \cdot 10^{-2} \cdot \chi^2 - 3,4134 \cdot 10^{-3} \cdot \chi - 6,7745 \cdot 10^{-4} \quad (\text{a20})$$

$$c_9 = -2,3355 \cdot 10^{-2} \cdot \chi^4 - 0,2311 \cdot \chi^3 + 0,1121 \cdot \chi^2 + 0,0231 \cdot \chi + 1,9017 \quad (\text{a21})$$

$$c_{10} = -90,9958 \cdot \chi^4 + 296,7514 \cdot \chi^3 - 497,3182 \cdot \chi^2 + 93,4513 \cdot \chi + 572,2826 \quad (\text{a22})$$

Calcul du coefficient de transfert de chaleur : Le coefficient de transfert de chaleur h est calculé comme,

$$h = \frac{0,023 \cdot \left(\frac{\rho \cdot v \cdot D_h}{\mu} \right)^{0,8} \cdot \left(\frac{\mu \cdot c_p}{\lambda} \right)^{0,3} \cdot \lambda}{D_h} \quad (\text{a23})$$

où le diamètre hydraulique D_h est calculé comme,

$$D_h = \frac{4 \cdot S_a}{P_m} \quad (\text{a24})$$

avec

S_a la surface d'air dans une section de la pile du bois, calculée comme

$$S_a = (H \cdot A)_{\text{séchoir}} - N_L \cdot (e \cdot a - 2 \cdot e_b \cdot a_b) \quad (\text{a25})$$

et P_m le périmètre mouillé déterminé comme,

$$P_m = 2 \cdot N_L \cdot (L+H)_{\text{séchoir}} + 2 \cdot (L+H)_{\text{séchoir}} \quad (\text{a26})$$

Annexe a.3 : Géométrie et conditions opératoires des différents cycles de séchage réalisés pour l'optimisation de la relation donnant le coefficient de transfert global K

essai	e (mm)	x _{ini} (%)	x _{fin} (%)	Mo (kg)	v (m.s ⁻¹)	T (°C)	HR (%)	K x 10 ⁵ (kg.m ⁻² .s ⁻¹)	E (%)
1	27	1,03	0,16	64,2	3,3	69,2	68,2	7,48	6,80
2	18	0,01	0,13	58,6	1,9	60,0	70,0	3,91	1,10
3	18	0,60	0,18	61,7	2,8	69,2	70,0	12,5	2,80
4	18	0,58	0,22	58,5	4,0	70,0	72,0	12,6	4,10
5	41	0,56	0,12	61,7	1,5	70,0	60,0	6,01	3,00
6	41	0,69	0,14	66,2	1,5	70,0	68,6	4,26	3,60
7	41	0,74	0,14	83,2	6,1	70,0	70,0	6,53	6,70
8	41	0,61	0,14	81,8	4,7	70,0	70,0	8,07	3,20
9	18	0,81	0,13	61,7	2,8	69,2	70,8	7,61	11,90
10	41	0,69	0,15	75,6	3,1	70,0	70,0	6,39	1,80
11	41	0,60	0,15	61,7	1,5	70,0	71,1	6,17	1,90
12	41	0,59	0,14	75,3	4,7	69,2	45,3	9,04	0,20
13	18	0,46	0,17	74,7	1,5	69,1	71,5	7,29	0,03
14	27	0,59	0,11	65,0	3,7	60,0	28,6	6,27	9,10
15	27	0,47	0,13	58,4	3,7	59,4	31,7	7,44	3,70
16	27	0,72	0,15	58,8	2,4	59,2	38,0	8,02	2,60
17	30	0,69	0,16	57,8	3,7	59,6	37,0	9,02	5,10
18	30	0,98	0,19	83,7	5,1	51,8	71,4	7,81	1,10
19	50	0,46	0,11	99,7	5,3	65,0	45,0	3,56	0,10
20	30	0,81	0,10	83,7	2,1	49,1	72,2	5,21	0,60
21	50	0,90	0,20	93,8	2,1	65,0	45,0	3,11	0,03
22	18	1,14	0,13	35,2	3,5	70,0	70,0	12,7	12,00
23	27	0,76	0,22	66,4	3,5	70,0	70,0	8,25	1,20
24	41	0,60	0,14	59,0	3,5	70,0	70,0	6,07	4,70
25	27	0,94	0,15	57,4	1,7	70,0	70,0	4,67	9,50
26	27	0,56	0,12	66,2	2,0	70,0	70,0	5,72	2,30
27	27	0,78	0,12	68,9	2,6	70,0	70,0	6,25	3,90
28	27	0,82	0,12	60,1	4,6	70,0	70,0	8,87	6,50
29	27	0,72	0,12	61,0	5,7	70,0	70,0	9,03	5,70
30	27	0,69	0,15	64,9	3,5	40,0	70,0	4,5	2,20
31	27	1,20	0,14	65,9	3,5	50,0	70,0	4,73	4,60
32	27	0,94	0,22	65,9	3,5	60,0	70,0	5,48	0,80
33	27	0,65	0,10	66,3	3,5	80,0	70,0	10,9	6,30
34	27	0,72	0,13	65,4	3,5	60,0	45,0	8,22	5,60
35	27	0,72	0,11	65,0	3,5	60,0	55,0	7,98	4,30
36	27	0,76	0,27	69,4	3,5	60,0	70,0	5,48	3,90
37	27	0,83	0,13	64,0	2,3	60,0	57,0	5,14	0,90
38	27	0,93	0,17	64,0	2,3	60,0	75,0	4,42	0,80
39	27	0,73	0,23	64,0	2,3	60,0	85,0	3,21	1,00
40	30	0,89	0,44	94,2	2,5	50,0	88,0	2,75	0,30
41	30	0,44	0,20	94,2	2,5	60,0	66,0	4,44	2,72

PART B

**DISCOLORATION DU HETRE AU COURS DU SECHAGE A BASSE
TEMPERATURE**

S.C.D. - U.H.P. NANCY 1
BIBLIOTHÈQUE DES SCIENCES
Rue du Jardin Botanique
54600 VILLERS-LES-NANCY

I INTRODUCTION

Le hêtre est une essence disponible dont les caractéristiques physiques et mécaniques en font une des essences les plus transformées dans l'industrie de l'ameublement ou du parquet.

Depuis quelques années, on note un accroissement de la demande pour des sciages plus clairs qui ne sont plus systématiquement étuvés. Les industriels recherchent donc des bois clairs, mais surtout des bois présentant une grande homogénéité de couleur. Le hêtre est connu pour son « cœur rouge », mais le problème pénalisant souvent rencontré, est l'apparition de colorations au cours du séchage ou du stockage. Cette coloration hétérogène est parfois uniquement localisée sur les faces à l'emplacement des lattes d'empilage, mais peut également apparaître sur toute la surface.

Différents travaux expliquent ces phénomènes de discoloration de manières différentes selon les températures considérées. Dans le cas du séchage basse et moyenne température, il semble qu'une réaction chimique d'oxydation de certains extractibles (tanins) soit à l'origine de la coloration du hêtre.

Cette deuxième partie de la thèse a pour objectif de déterminer les conditions dans lesquelles ces discolorations peuvent apparaître, mais également d'identifier les phénomènes conduisant à ces discolorations.

II REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

2.1.- Généralités

Le hêtre (*Fagus sylvatica*) est une des essences les plus importantes pour l'industrie du bois française. En France, le hêtre couvre une surface de 1,24 Mha, avec un accroissement moyen de 5 m³/ha/an, et une rotation moyenne de 120 ans. La production annuelle de bois rond de hêtre est de 2 Mm³. (Arbez et Lacaze, 1998).

Ses propriétés physiques et mécaniques comme sa facilité d'usinage permettent de nombreuses utilisations dans l'industrie de l'ameublement ou du parquet (Venet, 1986). Sa couleur varie suivant les provenances de blanc-crème à rosâtre et sa texture est homogène (Jacquiot et al. 1973).

Parfois le hêtre présente une zone centrale fortement colorée en rouge foncé, que l'on appelle communément le cœur rouge. Le cœur rouge est un faux duramen qui se développe dans l'arbre sur pied et serait dû à une oxydation bactérienne dans les zones de cœur déshydratées (Torelli, 1984). Le cœur rouge est détecté sur les grumes ou sur les sciages.

Depuis que la mode des bois clair est apparue, l'industrie recherche des sciages clairs et de couleur homogène. Les sciages de hêtre présentent souvent des traces colorées qui apparaissent au cours du séchage. Ces discolorations hétérogènes sont parfois localisées sur les faces des pièces de bois ou seulement à l'emplacement des lattes d'empilage (taches des baguettes).

L'étuvage doux du hêtre peut masquer les discolorations et permet d'obtenir une couleur plus homogène. Les pratiques actuelles visant à réduire ce problème de discoloration consistent à réduire le temps de stockage des grumes et des sciages avant séchage ou étuvage. Les conditions d'étuvage sont ensuite définies en fonction de la teinte recherchée (Tableau 1). Pour donner au hêtre une coloration rose clair, l'étuvage des sciages est réalisé à une température de 80 à 85 °C, durant 25 heures (Bary-Lenger, et al. 1999).

Tableau 1: Modification des couleurs naturelles de certains feuillus au cours de l'étuvage.

(Bary-Lenger et al. 1999).

Essence	Couleur naturelle	couleur après étuvage	Température optimale (°C)	Mode d'étuvage	Durée d'étuvage (h)
Hêtre (<i>Fagus sylvatica</i>)	blanchâtre à rosé	saumon clair	80	vapeur	50
Chêne (<i>Quercus sp.</i>)	brun clair uniforme	brun foncé	70	vapeur	30
Frêne (<i>Fraxinus excelsior</i>)	blanc à jaune nacré	blanc rosé	70	eau chaude (indirecte)	40
Merisier (<i>Prunus avium</i>)	brun rosâtre	presque rougeâtre	60	eau chaude (indirecte)	40

Si l'étuvage permet de mieux valoriser le hêtre en améliorant les rendements et en homogénéisant la couleur, les dernières études montrent toutefois qu'il y a environ 10 % du volume du hêtre séché en scierie qui est déclassé suite à des discolorations, ce qui engendre une réduction en valeur commerciale de près de 15 % (Joyet, 1998).

2.2.- Origine de la discoloration du hêtre

Il semble que le brunissement au cours du séchage du hêtre est dû à la transformation chimique des extractibles en présence d'oxygène. La réaction est conditionnée par l'humidité du bois, la température de séchage et la présence d'oxygène dans l'atmosphère de séchage. Irmouli (1998) montre le rôle précurseur des extractibles, notamment des tanins condensés sur la discoloration rose du hêtre lors de l'étuvage. Il a mis en évidence la conversion par hydrolyse acide des proanthocyanidines du hêtre en cyanidine qui est un pigment anthocyanique de couleur rouge (annexe b.1)

Le processus de discoloration par oxydation chimique au cours du séchage du hêtre serait semblable à celui observé dans le cas du chêne *Quercus sp* (Charrier, 1992) et de l'érable *Acer sp.* (Smith et Herdman, 1996), mais différent du celui conduisant au brunissement du pin *Pinus sp.* (Kreber et al.1998; Terziev, 1995; Terziev et al.1993).

Pour le chêne, il a été montré que la discoloration est d'origine oxydative et que les tanins hydrolysables sont les précurseurs du brunissement (Charrier, 1992). Par des analyses comparatives d'échantillons de chêne prélevés sur des zones colorées et non colorées, Charrier (1992) a proposé un mécanisme de dégradation hydrolytique des tanins hydrolysables (ellagitanins) en castalagine et en un résidu de la castalagine facilement oxydable et capable de produire des composés jaunes et bruns. En complément, des essais de séchage sous vide en vapeur surchauffée ont montré l'absence de brunissement, ce qui signifie pour Charrier (1992) la participation d'un mécanisme oxydatif dans l'origine de cette discoloration.

En revanche, la discoloration du pin est due à une réaction thermochimique entre les sucres et des composés azotés du bois (réactions de Maillard), laquelle se développe en dessous de la surface. Le brunissement provient de la formation d'un gradient de concentration en sucres (fructose) et composés azotés (acides aminés tels que l'acide glutamique). Celui-ci est produit par la migration de l'eau au cours du séchage sous certaines conditions de température. Les sucres dissous dans l'eau peuvent réagir avec des acides aminés pour produire une coloration brune au-dessous de la surface du bois (Kreber et al. 1998; Terziev 1995; Terziev et al. 1993). Il a été montré que le brunissement au cours du séchage du pin apparaît à 0.5 mm au-dessous de la surface du bois et peut pénétrer jusqu'à 2 mm à l'intérieur des sciages.

Une autre forme de discoloration souvent observée au cours de séchage du hêtre est les taches de baguettes. Ce type de discoloration semble être aussi d'origine oxydative. Pour l'érable, il a été observé une faible quantité d'extractibles phénoliques dans les zones tachées sous les baguettes ; ceci conforte l'hypothèse d'une oxydation de composés phénoliques insolubles (Miller et al. 1990).

Tableau 2: Mécanismes à l'origine des discolorations au cours de séchage du bois.

Essence	Mécanisme
Hêtre	Hydrolyse et oxydation chimique des proanthocyanidines ¹ (Irmouli, 1998)
Chêne	Hydrolyse et oxydation chimique des ellagitanins (Charrier , 1992)
Erable	Oxydation chimique des composés phénoliques (Miller et al. 1990)
Pin	Réactions de Maillard avec les sucres réducteurs (McDonald et al.2000)

¹ : hypothèse valable pour la discoloration du hêtre au cours de l'étuvage

2.3.- Les facteurs qui conditionnent la discoloration du hêtre

On peut classer les facteurs qui favorisent la discoloration au cours de séchage du bois en trois groupes :

- a) l'histoire de la grume (le stockage des grumes, la station de provenance, la période d'abattage)
- b) le stockage des sciages (conditions et durée de stockage, type de baguettes).
- c) les conditions de séchage (la température, l'humidité et la vitesse de l'air)

Pour le chêne, il a été montré par Charrier (1992), que la combinaison d'une humidité initiale du bois au-dessus de 30 % avec une température de séchage supérieure à 45 °C augmente la probabilité de discoloration au cours du séchage du chêne. Des cycles de séchage à une température comprise entre 30 et 40 °C, conduisent à un brunissement homogène sur tout le lot de bois séché (figure 1).

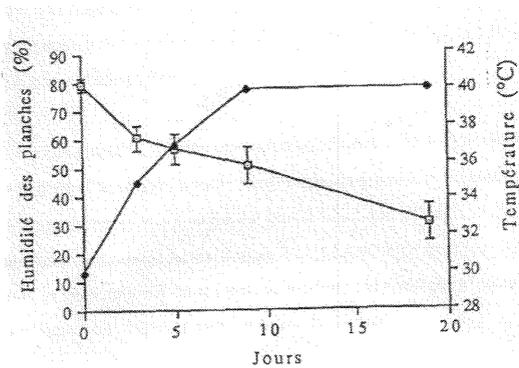


Figure 1 : Conditions de séchage du chêne conduisant à des faibles discolorations (Charrier, 1992).

Pour le pin, l'augmentation de la température de séchage et la réduction de l'humidité d'équilibre de l'air augmente la vitesse de séchage mais accentue la discoloration (Kreber et Haslett, 1997; Terziev et al. 1993). Kreber et Haslett (1997) observent plus de discoloration pendant un séchage rapide à 90/60 °C par rapport à un séchage lent 45/35 °C. De même, le brunissement est plus intense lorsque l'humidité relative de l'air passe de 80 % à 30 %. Le séchage rapide est propice à l'accumulation de précurseurs de la discoloration du pin. La température de séchage est le principal facteur qui favorise la discoloration du pin.

Charrier (1992) montre que l'augmentation de la vitesse de l'air au cours du séchage du chêne améliore la cinétique de séchage mais avec une intensification du brunissement. Lorsque la vitesse de l'air passe de 1 à 2 m/s, il observe une amélioration de 1/3 de la vitesse de séchage, en revanche la discoloration est plus intense.

Pour le pin, l'utilisation d'une basse température et d'une vitesse élevée de l'air réduit le brunissement mais avec une faible amélioration de la cinétique de séchage (Kreber et al. 1999). Par contre, pour la discoloration oxydative du chêne, l'augmentation de la vitesse de l'air pour le séchage peut favoriser la discoloration par l'apport d'une plus grande quantité d'oxygène à la surface du bois.

Joyet (1998) décrit entre autre, le stockage des grumes comme une des causes d'apparition des discolorations sur le hêtre. En revanche, pour l'érable, Smith et Herdman (1996) montrent que, pendant le séchage naturel, le bois provenant de grumes sciées rapidement après l'abattage, est plus clair que le bois provenant de grumes stockées de 3 à 6 semaines, alors que dans le cas d'un séchage artificiel, on n'observe pas de différences (figure 2). Vraisemblablement, pendant le stockage, les composés chimiques peuvent être modifiés par des actions enzymatiques et bactériennes, ce qui contribue à augmenter les risques de discoloration au cours du séchage naturel.

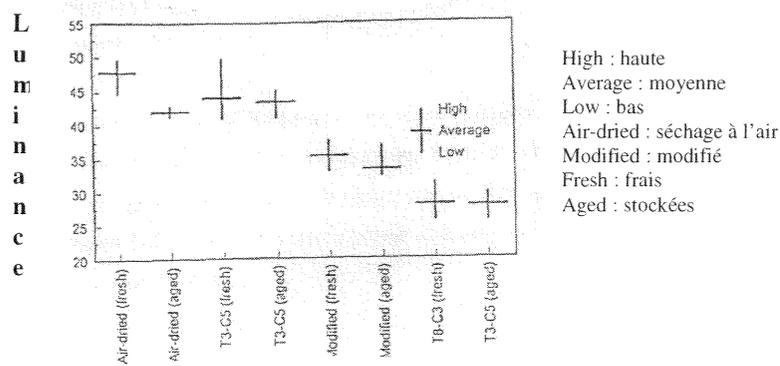


Figure 2 : Valeurs de luminance après séchage de l'érable *Acer saccharum* (Smith et Herdman, 1996)

Smith et Herdman (1996) montrent que dans le cas de l'érable, l'époque d'abattage de l'arbre n'a pas un effet très net sur la discoloration, Tattar et Rich (1973), cités par Smith et Herdman (1996) observent une plus faible quantité de composés phénoliques pour les bois abattus au printemps plutôt qu'en automne.

Par contre l'effet de l'origine géographique et le type de sol sur la discoloration du bois au cours de séchage ne sont pas bien connus à l'heure actuelle. Dans le cas du bouleau *Betula*

pendula, l'influence du type de sol semble se traduire par des différences dans la proportion des constituants chimiques dans le bois initial (Luostarinen et al.2000).

Pour les taches de baguettes, ce sont les caractéristiques des baguettes ainsi que les conditions de séchage qui conditionnent l'apparition de la discoloration. Zigrikas (2000) trouve en se basant sur des observations microscopiques que les zones des taches de baguettes d'iroko *Chlorophora excelsa* sont plus riches en produits colorés. Schmidt et Herdman (1996) montrent que les baguettes sèches et rainurées réduisent l'apparition de discoloration. Joyet (1998) recommande d'utiliser des baguettes en bois blanc et sec pour réduire les discolorations au cours de séchage de hêtre.

2.4.- Prévention et remèdes

La discoloration du hêtre au cours du séchage industriel semble pouvoir être en partie réduite d'une part en limitant la durée de stockage entre le sciage et le séchage, et d'autre part en utilisant une température de séchage basse au moins dans la première phase de séchage (jusqu'à 30 % d'humidité du bois).

L'étuvage est également utilisé pour réduire ces problèmes de discoloration et il permet d'obtenir une couleur rose plus ou moins intense mais surtout homogène (Irmouli, 1998). Selon la durée et la température d'étuvage, la coloration est plus au moins foncée, et masque l'éventuelle discoloration due au séchage qui suit. Irmouli montre également que la plus grande partie des extractibles sont solubilisés dès les premières heures d'étuvage. Il note en particulier une concentration maximale en tanins condensés dans les eaux d'étuvage du hêtre après seulement 4 heures de traitement. Ceci indique qu'un étuvage court peut réduire la quantité des précurseurs responsables de la discoloration du hêtre. La prolongation du cycle d'étuvage à 24 et même 48 heures permet d'homogénéiser la couleur des sciages.

Une imprégnation avec du dithionite de sodium a permis de réduire le brunissement du pin au séchage (Kreber et al. 1999b). Les performances de cette méthode sont directement liées à la qualité de l'imprégnation. Ces auteurs montrent que même un étuvage suivi d'une imprégnation par le procédé Bethell (vide et pression) ne sont pas suffisants pour assurer la

pénétration du dithionite de sodium. Ils font l'hypothèse que les faibles performances du dithionite de sodium sont dues à des changements irréversibles provoqués par l'étuvage sur les composés précurseurs du brunissement. Le dithionite peut-être également inactivé par oxydation.

L'imprégnation du hêtre par un citrate standard et l'acide propionique pour changer le pH du milieu réduit la discoloration (Koch et Bauch, 2000). A pH 7 la luminance à la surface est de 79 et elle augmente légèrement au cours des 24 heures de séchage à 50 °C. Dans le cas du bois témoin (pH 5.7) la luminance à la surface est de 77 et elle diminue faiblement au cours des 24 heures de séchage à 50 °C. Cette méthode semble être plutôt performante pour l'éclaircissement du hêtre vert.

La fumigation au bromure de méthyle de grumes de feuillus s'est montrée efficace pour limiter la décoloration grise et les taches de baguettes au cours du séchage (Schmidt et al. 1998). Ainsi les grumes fraîches ont été traitées pendant 72 heures au bromure de méthyle stockées 6 semaines (sous arrosage). De très bons résultats sont obtenus avec *Quercus sp*, mais la méthode est un peu moins performante avec d'autres feuillus comme *Fraxinus americana* et *Celtis laevigata*.

Pour réduire les taches des lattes, on préconise l'utilisation de baguettes fabriquées dans du bois sec et clair (sapin, épicéa). On peut également utiliser des baguettes profilées afin de réduire la zone de contact avec les avivés à sécher (Smith et Herdman, 1996). De nombreux industriels utilisent des baguettes de bois blanc pour réduire la discoloration au cours de séchage du hêtre et du chêne. Les baguettes en bois blanc profilées semblent réduire les taches de baguettes mais induisent des coûts supplémentaires. Une humidité élevée des baguettes favorise aussi la discoloration, en ralentissant le séchage dans la zone de contact.

Le séchage sous vide est considéré comme une technique qui limite les discolorations du bois au cours de séchage. La réduction de la discoloration pendant le séchage est due à la combinaison d'une atmosphère pauvre en oxygène et de températures basses.

Le séchage sous vide se montre performant pour réduire le brunissement de chêne. Guilmain et al. (1996) trouvent que le séchage sous vide discontinu ne produit pas de discoloration et que dans le cas du séchage sous vide continu, la discoloration apparaît pour des températures

de séchage supérieures à 70°C. Charrier et al. (1992) montrent à partir des mesures des coordonnées chromatiques L* (luminance) et h (angle de couleur), l'absence de discoloration du chêne après séchage sous vide en vapeur surchauffée. A propos de cette même technique, Joyet et Meunier (1996) décrivent une zone à risques de discoloration pour le séchage du chêne, comme une combinaison d'une humidité initiale du bois supérieure à 60 % et une température de séchage supérieure à 50 °C (figure 3). Ils montrent également qu'au-dessous de 30 % d'humidité du bois, les risques de discoloration sont très réduits (figure 3).

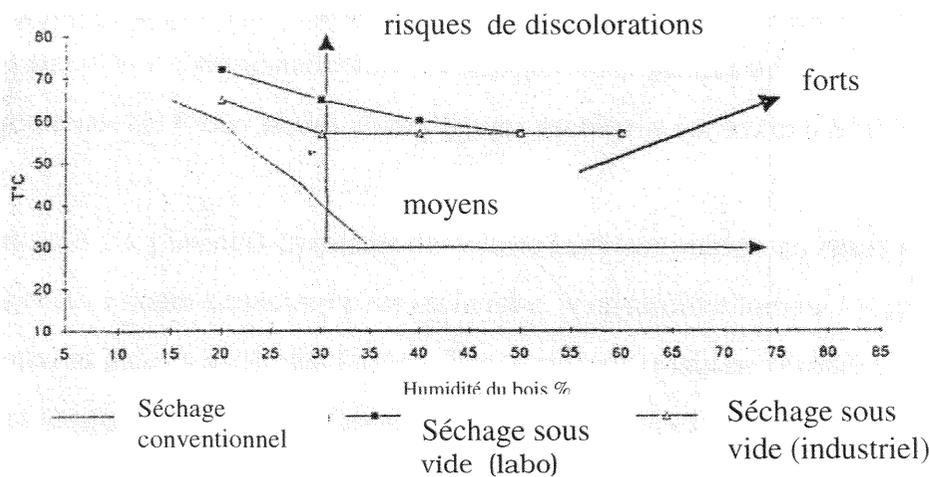


Figure 3 : Zone de risques de discoloration au cours de séchage du chêne. (Joyet et Meunier, 1998)

Par ailleurs, Westnay et al. (1997) montrent que le séchage sous vide en vapeur surchauffée élimine bien le risque de brunissement du pin, mais ils observent une discoloration grise à la surface du bois.

Selon Kreber et Haslett (1997), la compression du pin avant le séchage a permis de réduire la discoloration du bois, mais induit une augmentation du temps de séchage. Pour des conditions de séchage à 71/60 °C (température sèche de l'air/température humide de l'air),

et une compression en épaisseur de 10 % du bois, l'intensité de la discoloration passe à 0.85 pour une valeur de 2.25 pour le bois non compressé (0 sans coloration et 3 coloration intense); en revanche le temps de séchage augmente de 12 %. Ces auteurs font l'hypothèse que la compression densifie la surface de bois et empêche la migration des précurseurs de la discoloration au cours de séchage.

Plusieurs méthodes permettent de réduire les discolorations du hêtre au cours du séchage, mais la plupart restent encore du domaine de la recherche. Les traitements chimiques peuvent permettre de réduire les discolorations, et leur association à des traitements biologiques devrait vraisemblablement donner une solution plus performante. A l'heure actuelle, à l'échelle industrielle, seule la maîtrise des conditions de séchage permet de limiter les problèmes de discoloration du hêtre au cours du séchage.

En conclusion de cette revue de la littérature, la discoloration de hêtre au cours de séchage à basse température (température maximale du séchoir : 60 °C), n'a pas été suffisamment étudiée. L'hypothèse de l'oxydation des tanins condensés proposée par Irmouli (1998) est vérifiée à des températures d'étuvage proches de 100 °C. Notre travail de recherche porte sur le séchage à basse température, et vise à vérifier si des mécanismes identiques sont à l'origine des discolorations. Nous chercherons également à préciser les conditions d'apparition de ces discolorations.

III PRESENTATION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET DU PROTOCOLE DES MESURES REALISEES

Avant une présentation des matériels et méthodes utilisés nous rappellerons les hypothèses sur lesquelles ont reposé le plan de notre recherche, afin de mieux comprendre la démarche expérimentale utilisée.

La première partie de notre travail porte sur les conditions de séchage pouvant favoriser le développement de la discoloration au cours du séchage. Elles concernent :

La température : l'augmentation de la température intensifie la discoloration (Charrier, 1992 ; Avramidis et al. 1993 ; Kreber et Hasslett, 1997).

L'humidité relative de l'air : la discoloration est plus prononcée lorsque le séchage est rapide, c'est à dire à une humidité relative de l'air faible (Kreber et Haslett, 1997).

L'humidité du bois : la discoloration est plus intense lorsque l'humidité moyenne du bois est supérieure au point de saturation des fibres (Charrier, 1992).

Cette partie de notre étude a donc été menée à partir des observations rapportées précédemment selon lesquelles le développement de la discoloration est conditionné par les paramètres physiques : température de séchage, humidité relative de l'air et humidité moyenne du bois.

Afin de mettre en évidence et de quantifier l'influence de ces paramètres nous avons réalisé des expériences de séchage où les trois paramètres opératoires précédents ont été modifiés.

De plus, les origines envisagées par les auteurs pour la discoloration du hêtre au cours du séchage peuvent être résumées ainsi :

1.- Une oxydation chimique. Irmouli (1998) montre qu'une oxydation chimique des tanins condensés est à l'origine de la coloration de hêtre au cours de l'étuvage. Nous n'avons pas vérifié la présence de tanins hydrolysables. Selon Scalbert et al. (1989), les tanins hydrolysables ne sont pas présents dans le bois de hêtre.

2.- Des réactions de Maillard. Selon la littérature (Mc Donald et al. 2000), la discoloration thermo-chimique (réactions de Maillard) ne se produit qu'à des températures au-delà de 70

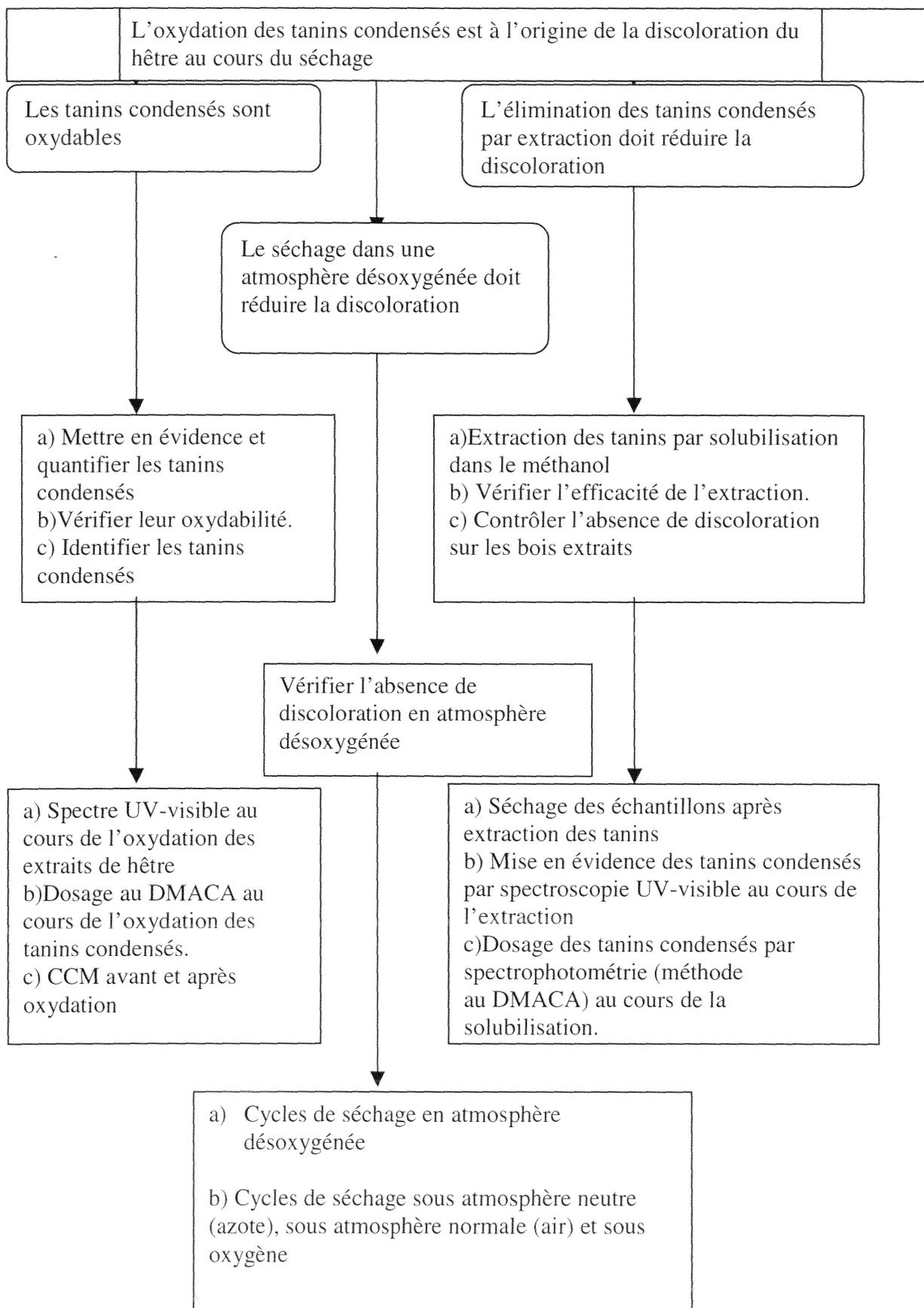
°C. Cette hypothèse doit donc être écartée dans le cas du séchage à des températures comprises entre 30 et 60 °C.

3.- Une oxydation biologique. Cette hypothèse n'a pas été vérifiée ; des essais antérieurs réalisés au sein de notre laboratoire tendent à montrer que la discoloration du hêtre n'est pas d'origine biologique (Benoit et Foucaut, 1996). Nos expérimentations ont été réalisées sur des bois conservés à -20°C, ce qui nous permet de penser que l'activité bactérienne est réduite. Signalons que l'oxydation biologique peut être provoquée de deux manières :

- a) une oxydation enzymatique avec les systèmes enzymatiques in situ dans le bois (d'origine endogène ; polyphénoloxydases, peroxydases).
- b) une oxydation enzymatique exogène, causée par des champignons ou des bactéries.

Dans les deux cas, une température de 25 °C au minimum est nécessaire.

Notre étude a donc été réalisée à partir de l'hypothèse selon laquelle la discoloration du hêtre au séchage est due à l'oxydation chimique des tanins condensés. C'est la deuxième partie de notre recherche. L'organigramme suivant résume les différentes actions développées pour contrôler le phénomène de discoloration et vérifier son origine vraisemblable oxydative.



3.1.- Dispositifs expérimentaux

Les cycles de séchage sont réalisés dans deux cellules de séchage expérimentales permettant de modifier la nature du gaz circulant. Le premier dispositif est décrit sur la figure 4.

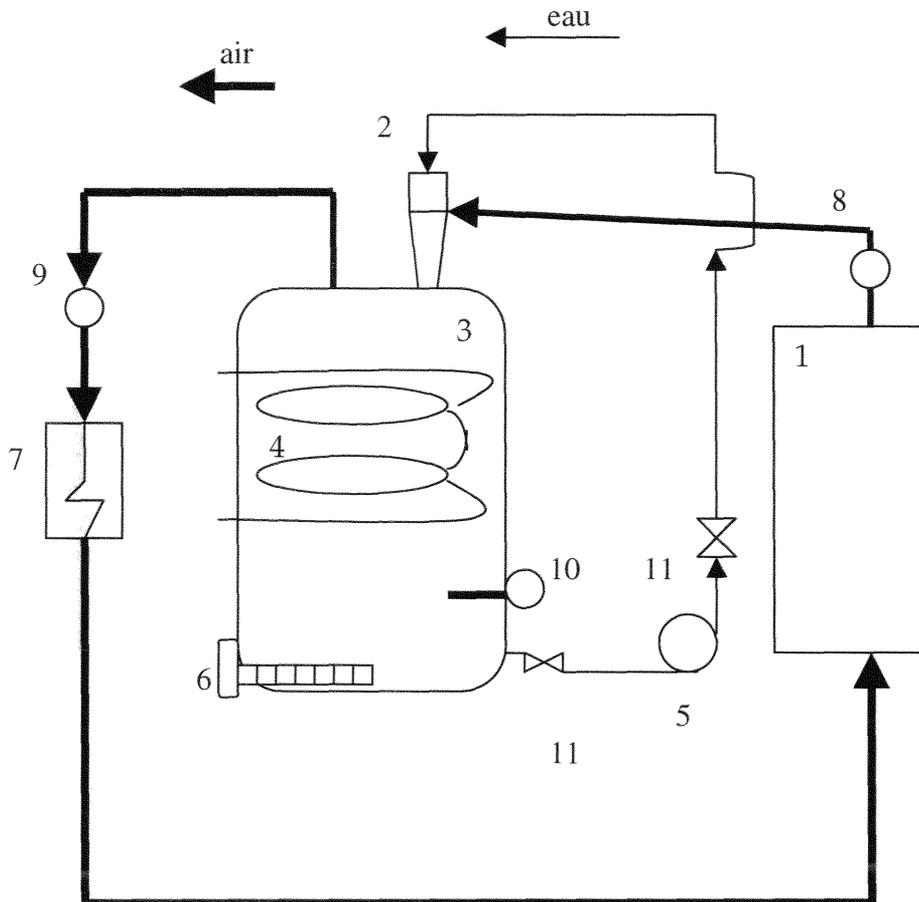


Figure 4 : Dispositif expérimental utilisé pour les cycles de séchage du hêtre

1 : séchoir	5 : pompe	9 : humidimètre
2 : venturi	6 : résistance chauffante	10 : thermomètre
3 : cuve d'eau	7 : réchauffeur	11 : vanne
4 : refroidissement	8 : débitmètre	

Il s'agit d'une boucle de séchage dans laquelle la circulation de l'air est assurée par un Venturi. L'air qui circule en boucle fermée est mis au contact du liquide contenu dans la cuve 3 lors de son passage dans le venturi. A la sortie de la cuve, l'air est saturé et sa température est égale à celle du liquide. Cet air est ensuite réchauffé avant de passer dans la cellule de

séchage. Les caractéristiques de l'air de séchage sont obtenues en fixant la température du liquide (température humide de l'air) et la température à la sortie du réchauffeur 6 (température sèche de l'air). L'ensemble est réglé, et permet de travailler à des températures jusqu'à 60 °C. La vitesse de l'air mesurée dans la cellule est comprise entre 0,5 et 1,2 m/s.

Le deuxième dispositif représenté sur la figure 5 est un réacteur cylindrique de 100 mm de diamètre et 150 mm de longueur à double enveloppe. Le système permet de travailler sous vide ou sous pression. Il permet également de travailler sous atmosphère spécifique (azote, oxygène, etc.). La température de séchage est fixée par celle de l'eau circulant dans la double enveloppe.

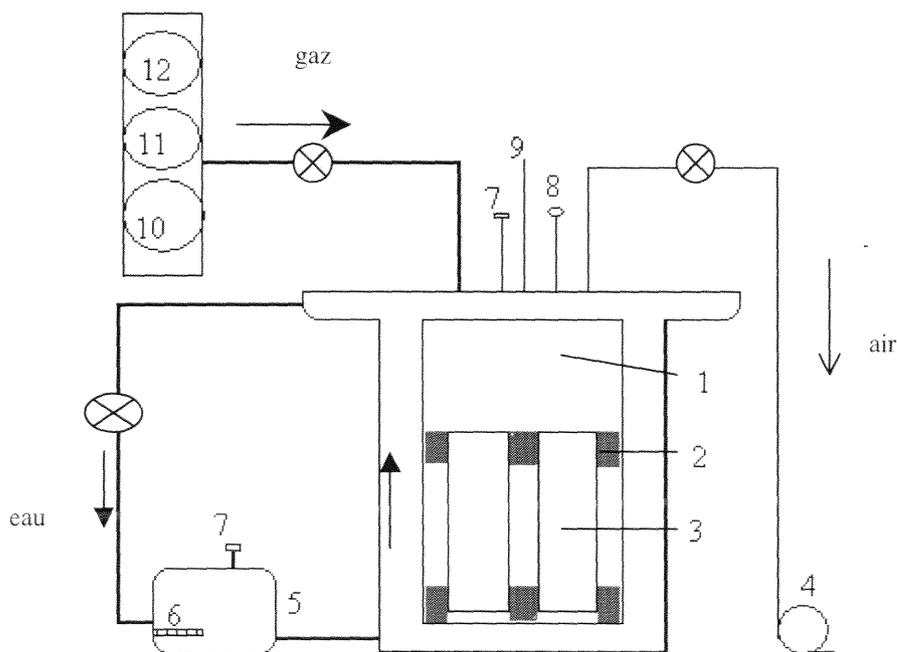


Figure 5: Schéma du réacteur de séchage

- | | |
|--------------------------------|--------------------------|
| 1: réacteur à double enveloppe | 2: lattes de sapin |
| 3: éprouvettes de hêtre | 4: pompe à vide |
| 5: cuve d'eau | 6: résistance chauffante |
| 7: thermomètre | 8: manomètre |
| 9: échappement | 10: oxygène |
| 11: azote | 12 : air |

3.2.- Description des mesures effectuées

Les échantillons de hêtre sont prélevés sur des sciages frais de 45 mm d'épaisseur et 105 mm de largeur sur la ligne de production d'une scierie de la Région Lorraine (Scierie Clerc, Deyvillers). Des éprouvettes de 30 mm d'épaisseur, 100 mm de largeur et 240 mm de longueur sont obtenues par rabotage, puis identifiées et stockées à l'abri de la lumière à -20°C pendant la période précédant leur utilisation.

Dans le premier dispositif de séchage pour chaque cycle de séchage, 6 échantillons sont disposés sur deux niveaux et sont séparés par des baguettes de sapin de 15 mm d'épaisseur et 30 mm de largeur. Entre deux échantillons un espace de 30 mm est maintenu.

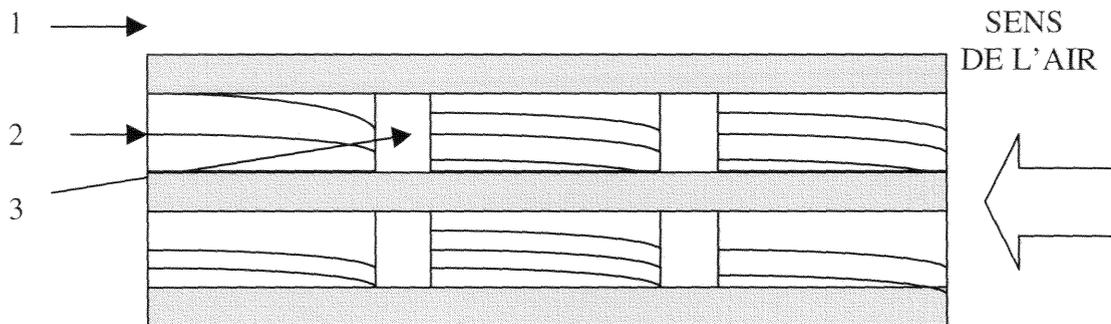
3.2.1.- Mesure de l'humidité des échantillons

L'humidité initiale des éprouvettes est déterminée par la méthode de la double pesée après séchage en étuve à 103 °C. La masse des éprouvettes est mesurée toutes les 24 heures au cours du cycle séchage, et l'humidité finale est contrôlée par un humidimètre à pointes.

3.2.2.- Mesure de la discoloration

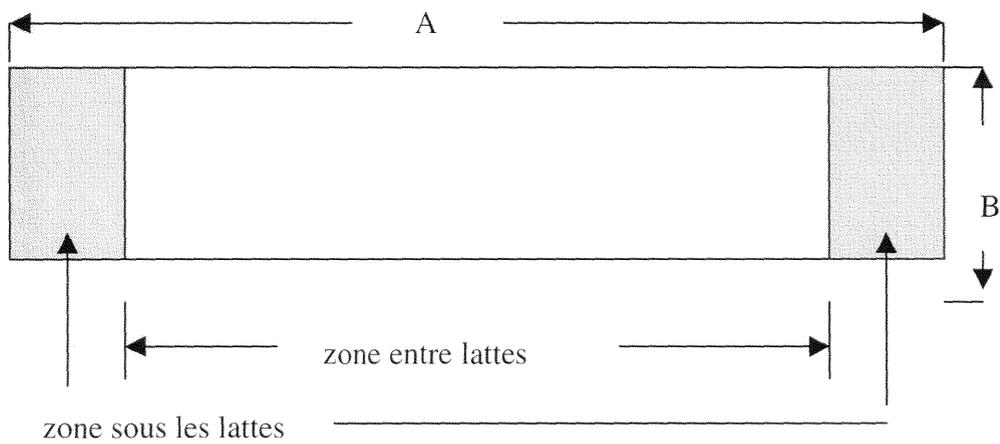
La coloration est caractérisée par une mesure colorimétrique et une épaisseur colorée. La mesure colorimétrique est effectuée selon la méthode CIEL*a*b* utilisée par les auteurs lors d'études similaires (Charrier et al, 1992; Smith et Herdman, 1996). Les coordonnées chromatiques sont mesurées avant et après séchage. Comme le montre Klumpers (1994), la luminance L* et l'angle de couleur h sont les coordonnées chromatiques les plus sensibles pour décrire la couleur du bois solide (annexe b.2). Ainsi, nous avons choisi pour comparer les cycles de séchage la luminance L* et l'angle de couleur h. Les mesures colorimétriques sont réalisées sur la surface des éprouvettes entre les lattes et à l'emplacement des lattes (figure 6). Un chromamètre Minolta cr200b est utilisé pour les mesures expérimentales.

L'épaisseur de la zone colorée est évaluée par des rabotages successifs de 0.5 mm d'épaisseur jusqu'à ce que la discoloration ne soit plus visible.



a) Disposition des échantillons à l'intérieur du séchoir

1 : baguettes de sapin 2 : échantillons de hêtre 3 : espace entre échantillons



b) Position des mesures des coordonnées chromatiques.

A : longueur de l'échantillon B : largeur de l'échantillon

Figure 6 : Dispositions des échantillons et des mesures des coordonnées chromatiques

3.2.3.- Dosage spectrophotométrique des tanins condensés du hêtre

Les tanins condensés sont extraits au méthanol en l'absence d'oxygène sur des échantillons de sciure de hêtre frais. La méthodologie est décrite en annexe b.3. La présence de tanins condensés est détectée par observation des spectres UV obtenus entre 200 et 600 nm.

La teneur en tanins condensés est déterminée par un dosage spectrophotométrique décrit en annexe b.3A. L'étalon utilisé est la D catéchine, et la courbe d'étalonnage est reportée en annexe b.3C. La teneur en tanins condensés est exprimée en % par rapport à la masse anhydre de sciure.

Des dosages réguliers (6, 12, 24 et 48 heures) sont effectués sur la solution au cours de l'extraction. La teneur en extractibles de la solution méthanolique est déterminée selon la méthode décrite en annexe b.3B.

Lors des essais d'oxydabilité des tanins condensés, des dosages successifs ont été réalisés au cours de la réaction d'oxydation. Les tanins extraits sont oxydés par barbotage d'oxygène dans la solution portée à 60°C.

3.2.4.- Caractérisation chromatographique sur couches minces

L'identification des extraits est réalisée par chromatographie sur couches mince CCM (annexe b.4). Les solvants utilisées sont les mélanges acétone/toluène/acide formique (60:60:10, v/v). La révélation des plaques est réalisée par pulvérisation de 4- diméthylaminocinnamaldéhyde (DMACA), qui se traduit par une coloration bleu-vert en présence de proanthocyanidine. Le témoin utilisé est la D(+) catéchine. L'analyse chromatographique des extraits du hêtre a été réalisée avant et après oxydation.

IV RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

4.1.- Etude des paramètres physiques conditionnant le développement des discolorations du hêtre au cours du séchage

Dans cette partie nous voulons déterminer les paramètres favorisant le développement des discolorations, tels que la température, l'humidité d'équilibre et l'humidité du bois. Des cycles de séchage à différentes températures et différentes humidités sont réalisés afin de cerner au mieux l'influence de ces paramètres.

4.1.1.- Description des cycles de séchage

Une première série d'essais de séchage a été réalisée en faisant varier la température de l'air entre la température ambiante et 55 °C. Le cycle de séchage 1 a été réalisé à l'air libre à l'intérieur de l'ENSTIB. Dans cette première série d'essais nous avons réalisé une comparaison entre les différents cycles de séchage en mesurant l'épaisseur de la zone colorée par rabotage, au moment où la coloration était visible à la surface du bois. Les conditions de température et d'humidité d'équilibre de l'air de séchage sont notées dans le tableau 3.

Tableau 3: Conditions de séchage (série 1)

cycle	T (°C)	T _H (°C)	x* (%)	t ¹ (h)
1	21	17	18,2	336
2	36	32	17,8	44
3	40	36	16,7	24
4	50	43	13,8	24
5	49	43	14,5	24
6	52	45	13,3	22
7	56	44	10,1	14

1 : Temps de séchage lorsque la discoloration est observée

Dans une deuxième série de cycles de séchage, nous avons suivi l'évolution au cours de temps des coordonnées chromatiques entre les lattes et sous les lattes. Nous avons aussi mesuré l'épaisseur de la zone colorée cette fois en fin de séchage. La température de l'air a varié entre 27 et 60 °C et le cycle de séchage 8 a été réalisé à l'air libre - à l'intérieur de l'ENSTIB. Les conditions de séchage sont notées dans le tableau 4.

Tableau 4: Conditions de séchage (série 2)

cycle	T (°C)	T _H (°C)	x* (%)	t (h)
8	27	23	17,7	672
9	30	27	19,9	72
10	37	28	12,6	96
11	47	32	9,2	96
12	50	46	15,6	72
13	54	40	9,5	96
14	55	33	6,5	96
15	62	60	20	72

La première série d'essais de séchage du hêtre à différentes températures, montre que plus la température de séchage est élevée plus la coloration apparaît rapidement et plus la profondeur de la zone colorée est importante (Figure 6). Lors du cycle 7 à 56/10.1 (°C/%) la profondeur de la zone colorée est de 1,5 mm sur cinq des six échantillons (tableau 5). Le temps pour lequel apparaît la discoloration est d'environ 14 heures (tableau 3). En revanche, lors du cycle 6 à 52/13.3 (°C/%) la discoloration apparaît après environ 22 heures (tableau 3), sur une profondeur de 1 à 1,5 mm (tableau 5). Aux températures de séchage inférieures à 50 °C, l'épaisseur de la zone colorée est très faible. En définitive, un accroissement de la température favorise la vitesse de séchage et la discoloration mais le phénomène ne devient prononcé qu'au delà de 50 °C.

Tableau 5: Profondeur de la discoloration à l'apparition de la discoloration (série 1)

cycle	Épaisseur de la zone colorée à la apparition de la discoloration (mm)						moyenne
	N° pièce 1	2	3	4	5	6	
1	0,5	0,0	0,5	1,0	0,0	0,5	0,42
2	2,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,33
3	0,0	0,0	0,5	0,5	0,0	0,5	0,25
4	0,0	0,0	0,0	0,5	0,5	0,5	0,25
5	0,5	0,0	0,5	0,0	0,0	0,0	0,17
6	1,0	1,5	0,0	1,5	1,0	1,0	1,00
7	1,5	1,5	1,5	1,5	1,5	0,0	1,25

La figure 6 montre que le début de la discoloration semble se produire à une humidité qui augmente avec la température de séchage. A 36 °C, elle apparaît alors que l'humidité moyenne du bois est de 32 %, à 40 °C de 53%, à 52 °C de 61% et à 56 °C de 51 %. Toutefois, il serait intéressant de connaître l'humidité de surface qui diminue plus vite en fonction de la température. La coloration étant superficielle il est donc possible qu'elle apparaisse à une humidité particulière du bois supérieure à la saturation des fibres et qui augmente avec la température de séchage.

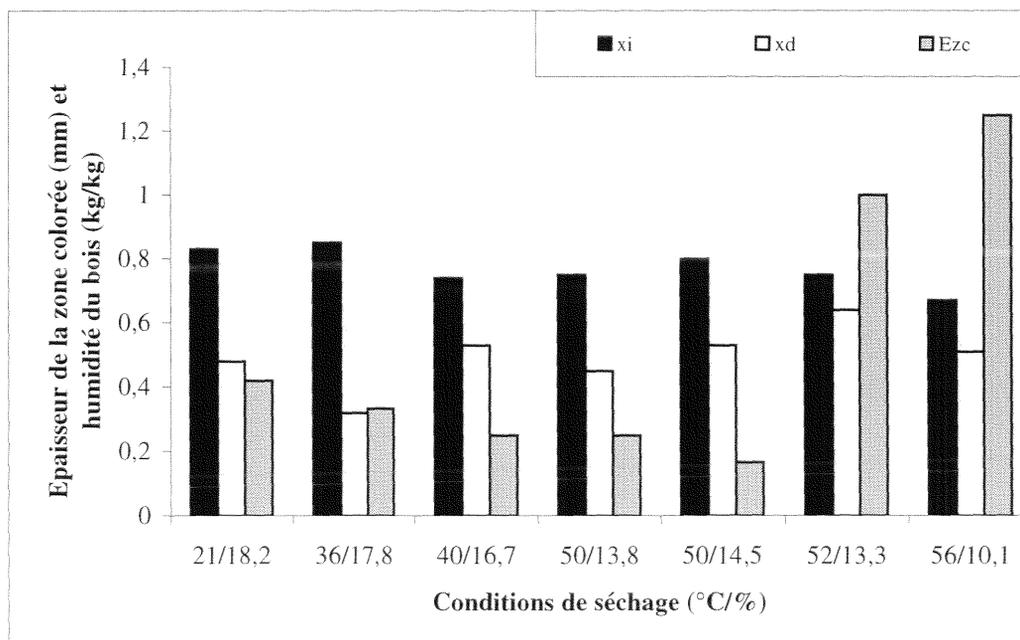


Figure 6: Influence de la température et de l'humidité d'équilibre sur l'épaisseur de coloration (série 1)

Ezc: épaisseur de la zone colorée (mm) xi: humidité initiale du bois (kg/kg) xd: humidité à laquelle apparaît la discoloration (kg/kg)

La figure 7 montre que la chute de luminance mesurée entre les lattes augmente avec l'élévation de la température. Pour les cycles 27/17.7, 30/19.9 et 37/12.6 ($^{\circ}\text{C}/\%$) la chute de la luminance est inférieure à 2 % ce qui n'est pas perceptible par l'œil humain. A partir du cycle 47/9.2 ($^{\circ}\text{C}/\%$) le foncement devient beaucoup plus important. De même, l'épaisseur de la zone colorée passe au-delà de 1,5 mm (tableau 6).

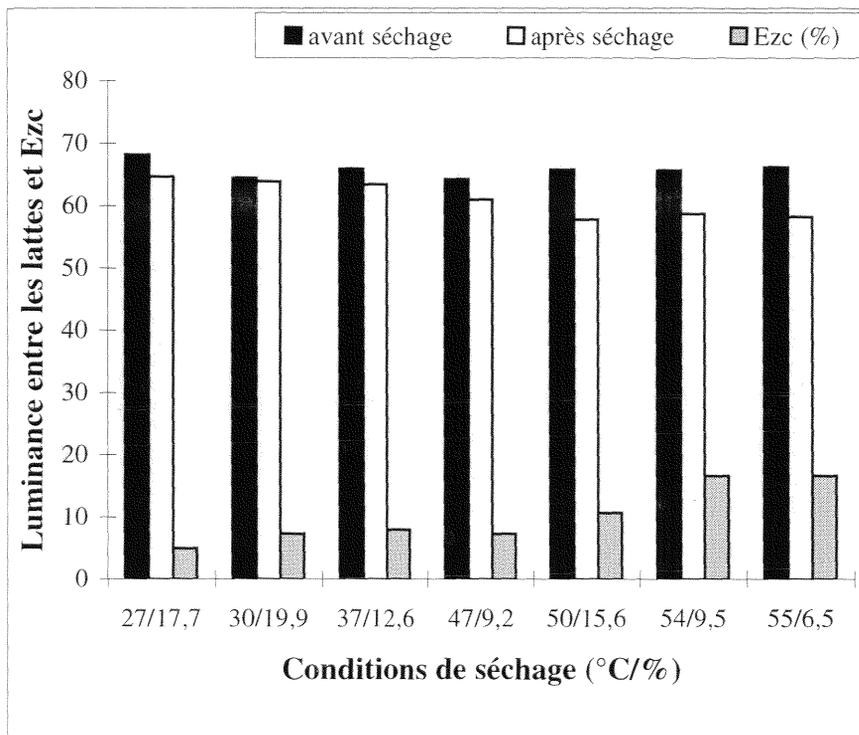


Figure 7 : Coordonnées chromatiques et épaisseur de la zone colorée (Ezc) en fin de séchage dans différentes conditions de température et d'humidité d'équilibre (série 2)

Tableau 6: Profondeur de la discoloration en fin de séchage (série 2)

cycles	Épaisseur de la zone colorée après le séchage (mm)						moyenne
	N° pièce						
	1	2	3	4	5	6	
8	0,5	1,0	0,5	0,5	1,0	1,0	0,75
9	1,0	0,5	1,0	0,5	0,5	1,0	0,8
10	1,5	1,5	1,0	1,0	1,0	1,0	1,2
11	1,0	1,0	1,5	1,0	1,0	1,0	1,1
12	1,0	1,0	1,0	2,5	1,5	2,5	1,6
13	2,0	1,0	3,0	3,0	3,0	3,0	2,5
14	2,5	3,0	2,0	3,0	2,0	2,5	2,5

Le tableau 7 montre que l'angle de couleur mesuré entre les lattes varie avec les différents cycles de séchage. A partir du cycle 37/12.6 (°C/%) on note un rougissement des échantillons après séchage. La variation de l'angle de couleur semble peu sensible à la montée en température. Sous les lattes, on observe un léger jaunissement sauf lors des cycles 50/15.6 et 62/20 (°C/%) où les surfaces de bois rougissent légèrement.

Tableau 7 : Coordonnées chromatiques (série 2)

cycle	avant séchage				après séchage			
	sous les lattes		entre les lattes		sous les lattes		entre les lattes	
	h	L*	h	L*	h	L*	h	L*
8	51,4	67,7	51,3	68,2	70,1	63,6	70,1	64,7
9	50,2	65,6	55,8	64,5	52,8	64,4	56,6	63,9
10	72,1	65,7	72,7	65,9	73,9	73,4	66,0	63,5
11	72,3	65,5	73,0	66,2	71,9	71,3	60,7	54,3
12	55,5	65,1	56,8	65,8	52,8	62,2	50,2	57,8
13	72,3	64,6	73,0	65,7	71,8	68,5	65,7	58,7
14	71,5	64,9	72,7	66,2	71,7	70,0	65,3	58,3
15	59,9	63,8	59,7	63,8	56,7	53,8	53,0	46,7

La figure 8 présente l'évolution de la luminance lors de cycles de séchage réalisés avec une humidité relative faible (cycles a, c et e) et avec une humidité relative élevée (cycles b, d et f). Pour les premiers cycles le séchage est rapide alors qu'il reste peu prononcé dans les trois autres cas.

Pour les températures inférieures à 40 °C (cycles a et b), les variations de luminance sont faibles aussi bien entre les lattes que sous les lattes.

Lorsque la température de séchage devient voisine de 50 °C, on obtient une discoloration mais cette dernière est assez différente selon l'humidité du bois. Ainsi à température fixée si l'humidité du bois varie rapidement on observe une discoloration entre les lattes mais sous les lattes, la luminance varie peu et elle a même tendance à augmenter. On observe un blanchissement de la surface (figures 8a, 8c et 8e) et ceci quelle que soit la température de séchage.

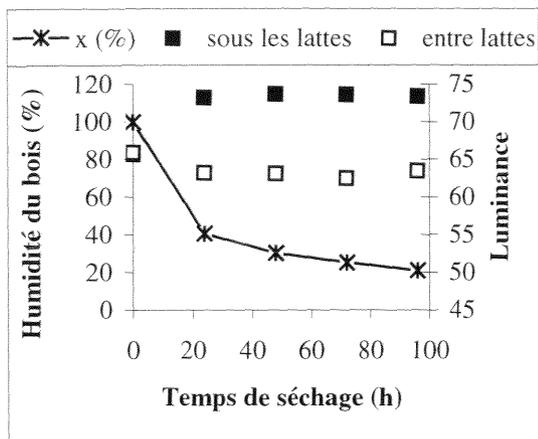
En revanche, à température et humidité du bois élevées, on constate une diminution importante des luminances entre les lattes et sous les lattes.

Les différentes observations nous conduisent à proposer une interprétation de l'influence des conditions opératoires de séchage sur la discoloration.

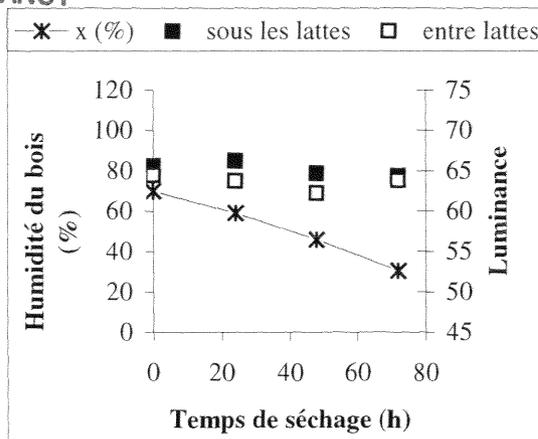
4.1.2.- Influence des conditions opératoires du séchage sur la discoloration

L'ensemble des cycles de séchage réalisés nous permet de dire qu'en augmentant la température on accroît la coloration, ce qui conduit à penser que la discoloration est un phénomène réactionnel puisqu'elle est activée par la température. Les épaisseurs colorées ne se trouvent qu'à la surface, les réactions de discolorations ne sont donc localisées qu'au voisinage de la surface.

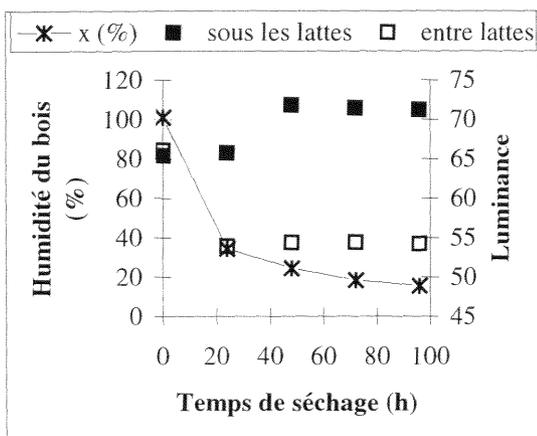
Le rôle de l'eau libre dans le bois (humidité supérieure à la saturation des fibres) peut être interprété ainsi. Lors de son élimination du bois, l'eau libre entraîne certains extraits de l'intérieur vers l'extérieur et ces extraits sous l'action de la température et probablement de l'oxygène (voir ci après) sont transformés en produits colorés. Lorsque le bois reste très humide la solubilisation des extraits est favorisée d'où à température élevée une forte coloration. Lorsque le bois sèche très rapidement cette solubilisation est plus faible et la coloration à température égale sera moins prononcée car la concentration d'extrait au niveau de la surface sera plus faible. Pour les parties des échantillons situées entre les lattes l'absence de coloration lors d'un séchage rapide peut être expliquée par un transfert de l'eau dans les



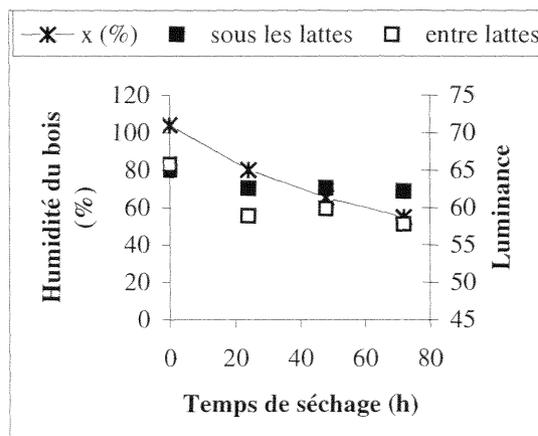
a) Cycle rapide (T=37 °C, HR=61 %, x*=12,6 %)



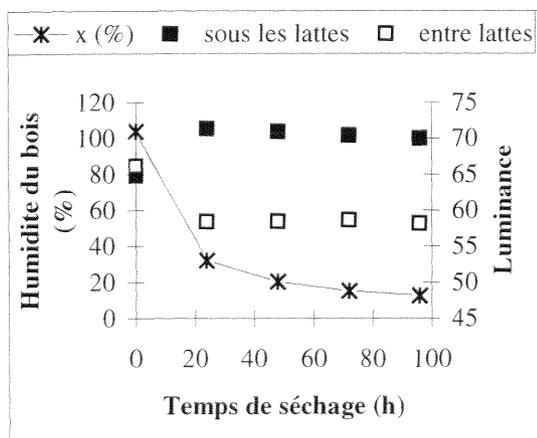
b) Cycle lent (T=30 °C, HR=85 %, x*=19,9 %)



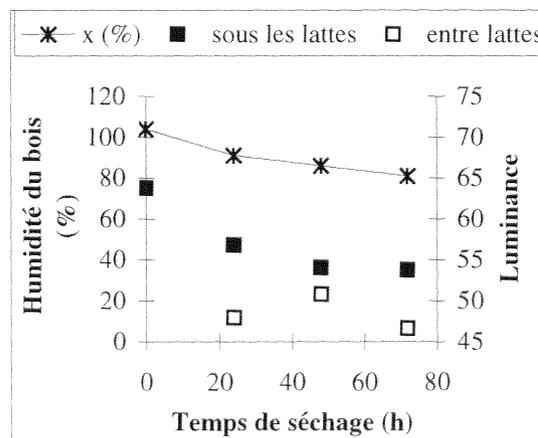
c) Cycle rapide (T=47 °C, HR=46 %, x*=9,2 %)



d) Cycle lent (T=50 °C, HR=79 %, x*=15,6 %)



e) Cycle rapide (T=55 °C, HR=33 %, x*=6,5 %)



f) Cycle lent (T=62 °C, HR=92 %, x*=20 %)

Figure 8 : Evolution de la luminance au cours des séchage rapide et lent

directions perpendiculaires aux lattes ce qui permet de réduire la migration des extraits vers les lattes.

En revanche, lorsque le milieu reste riche en eau, la migration des extraits peut se faire aussi dans la direction des lattes. De plus, la présence d'eau favorise le transfert thermique au sein de l'échantillon et la température au contact de la latte doit être supérieure à celle relative à un séchage réalisé à la même température sèche mais avec une température humide beaucoup plus faible. En définitive, l'eau libre favorise la solubilisation et la migration des extraits à la surface du bois. On peut comprendre pourquoi la discoloration n'apparaît pas comme dans le cas du chêne pour des humidités du bois inférieures au point de saturation des fibres.

Dans un plan où figurent les deux paramètres température et humidité du bois, on peut penser que les courbes isoluminance ont la forme indiquée sur le figure 9, la luminance devient de plus en plus petite à une humidité fixée au fur et à mesure que la température augmente et à une température fixée au fur et à mesure que l'humidité du bois augmente.

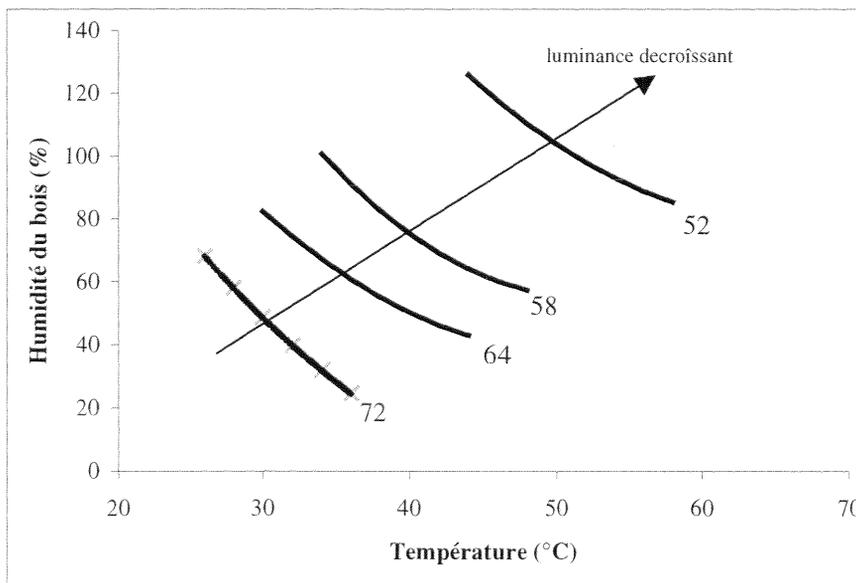


Figure 9 : Influence des conditions opératoires sur la discoloration du hêtre

L'analyse des conditions opératoires nous conduits à penser que la discoloration est due à une transformation chimique de constituants extraits par l'eau libre lors de son évacuation à la surface du bois. Le but de la deuxième étape est de confirmer que l'origine de la discoloration est une réaction de substances extractibles et d'en donner la nature.

4.2.- Etude des mécanismes à l'origine de la discoloration

Afin de mettre en évidence le mécanisme à l'origine de la discoloration du hêtre pendant le séchage du bois, deux types d'expériences ont été réalisées. Des cycles de séchage dans une atmosphère désoxygénée doivent montrer le rôle de l'oxygène, et des cycles de séchage sur des échantillons de hêtre dont on aura extrait les tanins mettront en évidence la participation de ces composés.

4.2.1.- Description des cycles de séchage sous différentes atmosphères. Mise en évidence du rôle de l'oxygène

Séchage en atmosphère désoxygénée

L'air circulant en boucle fermée est désoxygéné lors de sa mise en contact avec une solution de sulfite de sodium/sulfate de cobalt. Nous avons réalisé deux cycles de séchage, avec de l'air désoxygéné à 50 °C (tableau 8).

Tableau 8 : Conditions de séchage sous atmosphère désoxygénée

cycle	T _S (°C)	T _H (°C)	x* (%)	t (h)
16	49	42	14	26
17	53	43	11	98

La figure 10 montre les résultats des cycles de séchage réalisés en atmosphère désoxygénée par le mélange sulfite de sodium et sulfate de cobalt. De très faibles colorations sont éliminées par un rabotage de 0,5 mm sur l'ensemble des échantillons (tableau 9). Les échantillons sont ensuite refendus, et aucune coloration interne n'est observée. Il est intéressant de noter que les résultats sont identiques pour les deux cycles alors que la durée de séchage et l'humidité finale sont différentes. Pour le cycle 49/14 (°C/%), le séchage est conduit sur 26 heures, l'humidité du bois passe de 91 % à près de 40 % (figure b.4, annexe b.5). Un séchage de quatre jours permet d'abaisser l'humidité finale à 20% dans le cas du cycle 53/11 (°C/%) (figure b.5, annexe b.5). Des profondeurs de coloration similaires ont été observées lors de

cycles en atmosphère normale, mais à des températures inférieures à 40°C (figure 6, paragraphe 4.1.1).

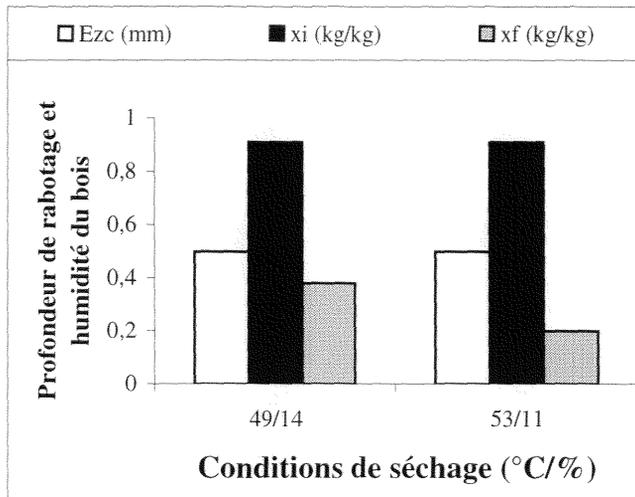


Figure 10 : Profondeur de la discoloration en fin de séchage et humidité du bois. Ambiance désoxygénée par un mélange de sulfite de sodium et sulfate de cobalt.

(Ezc : profondeur de la zone colorée. xi : humidité initiale. xf : humidité finale)

Tableau 9 : Profondeur de la zone colorée après séchage en atmosphère désoxygénée (série 3)

cycle	Profondeur de rabotage après le séchage (mm)						moyenne
	n°pièce						
	1	2	3	4	5	6	
16	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5
17	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5

Séchage sous azote, oxygène ou air (cinquième série)

Cette série d'essais vise à comparer les résultats obtenus sous différentes atmosphères de séchage (tableau 10).

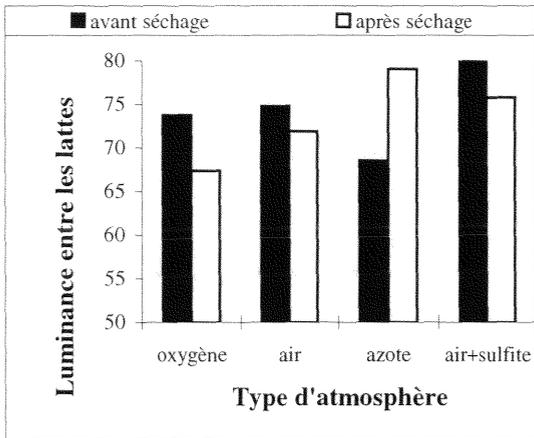
Tableau 10: Cycles de séchage sous différentes atmosphères

cycle	ambiante	T (°C)	t (h)
18	oxygène	50	72
19	air	50	96
20	azote	50	48
21	azote et sulfite	50	66
22	azote	50	48
23	azote	60	48
24	azote	70	24
25	oxygène	30	24
26	oxygène	50	18

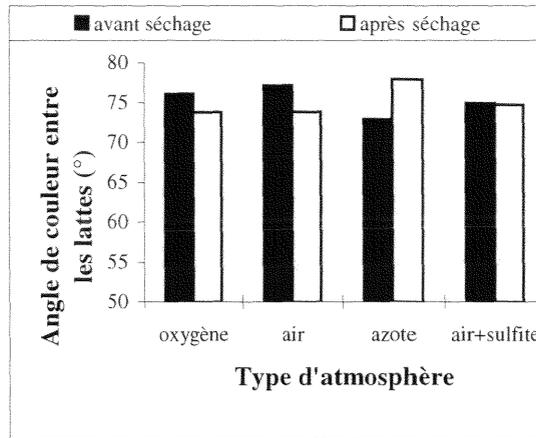
Dans cette série d'essais, nous avons comparé les cycles à partir d'une mesure des coordonnées chromatiques effectuée à la surface des échantillons sous les lattes et entre lattes. Quatre cycles de séchage à 50 °C permettent de vérifier l'influence d'atmosphères différentes : oxygène, air, azote et azote désoxygénée par sulfite. Trois cycles sous atmosphère d'azote à 50, 60 et 70 °C, ainsi que deux cycles de séchage sous oxygène à 30 et 50 °C sont également effectués.

Les figures 11a à 11d montrent clairement une augmentation de la luminance et de l'angle de couleur lors du cycle réalisé sous azote. Les variations de la luminance montrent qu'il y a un blanchissement de la surface entre les lattes (figure 11a) et sous les lattes (figure 11c). L'angle de couleur montre un jaunissement de la surface entre les lattes (figure 11b) et sous les lattes (figure 11d).

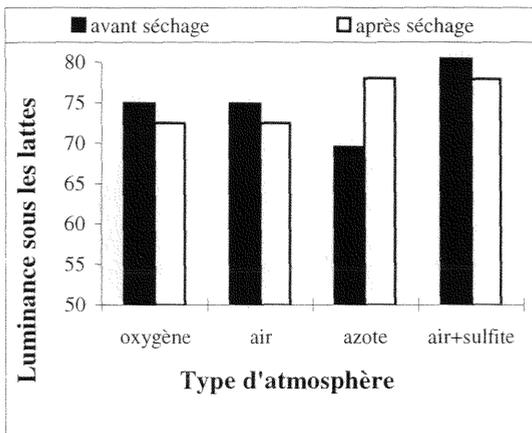
Les séchages sous oxygène ou à l'air induisent un rougissement notable entre les lattes et sous les lattes. Une coloration moins intense est observée entre les lattes lors du séchage à l'air (figure 11a), mais un assombrissement comparable sous les lattes est noté dans les deux cas. Ces écarts faibles peuvent également s'expliquer par des humidités initiales différentes pour les deux cycles. (figure b.6 par rapport à figure b.7 annexe b.6).



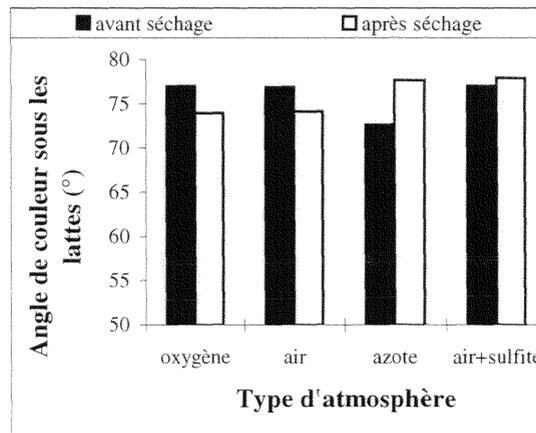
a)



b)



c)



d)

Figure 11: Coordonnées chromatiques lors des cycles de séchage à 50 °C sous azote, oxygène et air (série 4)

Cycles de séchage sous azote à 50, 60 et 70 °C

Les trois cycles de cette série sont réalisés sous azote afin de confirmer les précédents résultats pour différentes températures. Ici, nous avons utilisé trois niveaux de températures: 50, 60 et 70 °C.

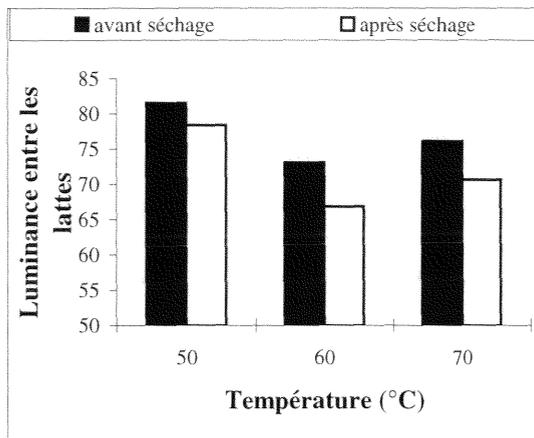
La figure 12a montre que la plus faible chute de luminance est obtenue à 50 °C, près de 4 %. La luminance sous les lattes chute de 2% (figure 12c), ce qui signifie qu'il y a un assombrissement de la surface entre les lattes perceptible par l'œil humain. L'assombrissement sous les lattes n'est pas visible à cette température. A 60 °C, le séchage sous atmosphère azote produit l'assombrissement le plus important, avec une chute de luminance entre lattes de 8.5 %. Lors de ces trois cycles de séchage, la chute de la luminance a été plus importante à la surface entre lattes. Une part de l'assombrissement observé à 50 °C peut être dû à la faible vitesse de séchage obtenue dans le réacteur de séchage, ce qui a limité la diminution de l'humidité des échantillons de bois (figure b.10 à b.12, annexe b.6). De plus l'eau contenue dans le bois n'est pas désoxygénée et elle peut jouer un rôle dans le phénomène de discoloration.

L'angle de couleur entre lattes (figure 12b) et sous les lattes (figure 12d) est également moins affecté à 50 °C. Le cycle à 60 °C présente le rougissement le plus notable avec une chute de l'angle de couleur de près de 9°. Il semble que le cycle à 70 °C induit de plus faibles discolorations par rapport au cycle à 60 °C parce que la vitesse de séchage est plus élevée. Les deux coordonnées chromatiques mesurés montrent que le séchage à 50 °C sous azote conduit à la discoloration la plus faible.

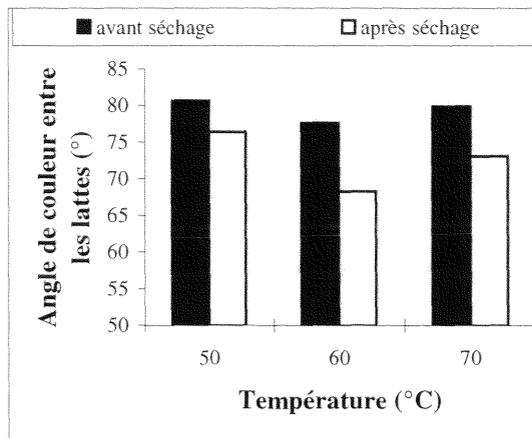
Cycles de séchage sous oxygène à 30 et 50 °C

Les essais réalisés à 50°C montrent que la coloration la plus importante est obtenue sous oxygène (figure 13a à 13d). Des essais à 30 et 50 °C visent à vérifier l'effet de la température dans ces conditions.

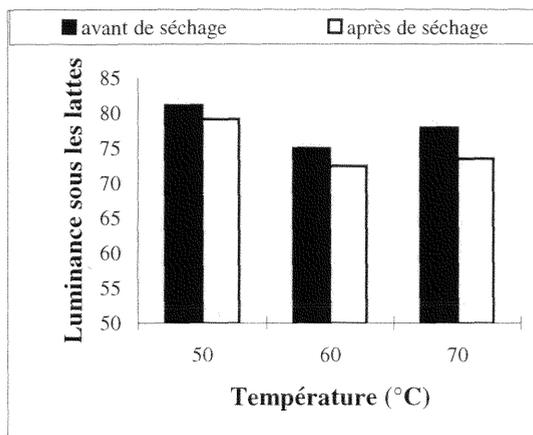
Les figures 13a à 13d montrent que la discoloration est plus importante à la température de 30°C. Dans ces conditions, la chute de la luminance entre les lattes est de 16 % (figure 13a) et sous les lattes de 21 % (figure 13c). A 50 °C, elle n'est que de 2% entre les lattes et on



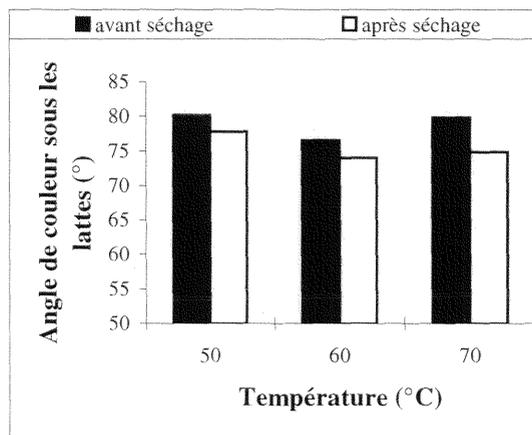
a)



b)

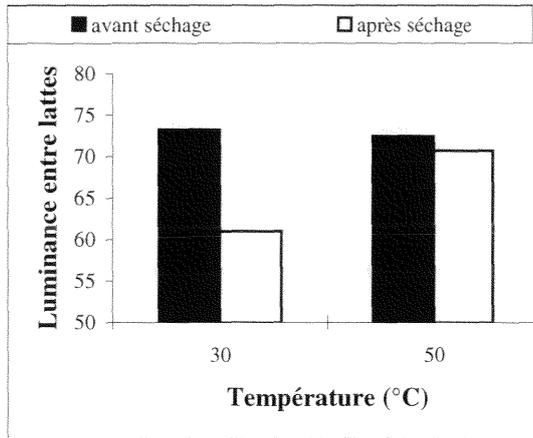


c)

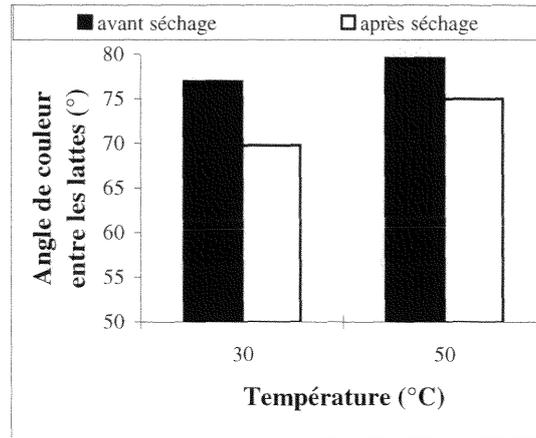


d)

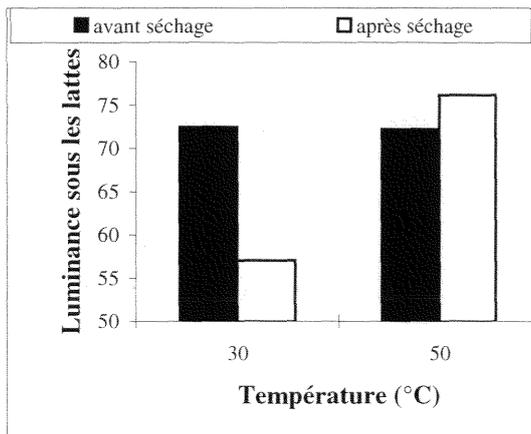
Figure 12: Coordonnées chromatiques lors des cycles de séchage sous azote à 50, 60 et 70°C (série 4)



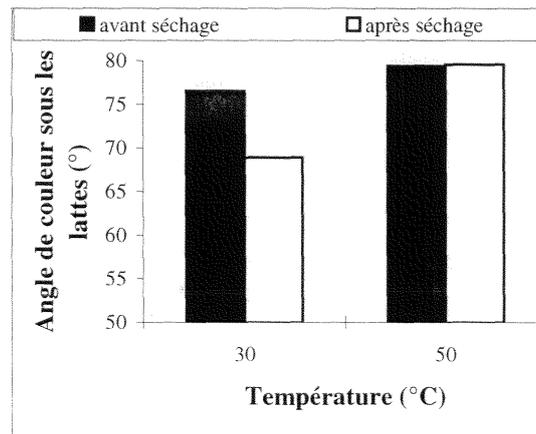
a)



b)



c)



d)

Figure 13: Coordonnées chromatiques lors des cycles de séchage sous oxygène à 30 et 50 °C (série 4)

observe une augmentation de luminance sous les lattes (figure 13c). L'angle de couleur indique un rougissement plus notable entre les lattes (figure 13b), et sous les lattes (figure 13d) au cours du séchage à 30 °C alors que les changements de couleur peuvent être très faibles à 50°C (figure 13d).

La température a une influence sur l'intensité des réactions chimiques d'oxydation, mais on observe encore que les discolorations dépendent de la vitesse de séchage. A 30°C, le bois reste humide (figure b.13, annexe b.6) et la réaction a lieu en présence d'oxygène même à 30 °C. En revanche, à 50 °C (figure b.14, annexe b.6) l'humidité du bois chute rapidement et les extraits n'ont pas le temps de migrer à la surface.

Le rôle de l'oxygène sur la discoloration du hêtre au cours du séchage

Lors des essais de séchage à 50 °C en atmosphère désoxygénée, nous avons montré que la discoloration est réduite. Un rabotage de 0.5 mm (figure 10) permet d'éliminer toute trace colorée. Les cycles effectués sous azote à 50 °C confirment que l'absence d'oxygène permet d'obtenir un bois clair (figure 11a à 11d).

Lorsque la température de séchage augmente jusqu'à 60 ou 70 °C, une coloration est de nouveau visible même en l'absence d'oxygène (figure 12a à 12d). Il faudra toutefois s'assurer qu'elle n'est pas due à l'oxygène dissout dans la phase aqueuse.

D'autre part, il a été montré que lors d'un séchage à 30 °C en présence d'oxygène, la discoloration peut être intense si le bois reste humide (figure 13a à 13d). On confirme que la discoloration entre les lattes et sous les lattes dépend fortement des deux paramètres température et humidité absolue du bois.

De plus, ces résultats montrent que le mécanisme de discoloration du hêtre au cours du séchage à basse température est de nature oxydative. Le processus de discoloration est favorisé par l'élévation de la température ou le ralentissement du séchage.

4.2.2.- Mise en évidence de l'implication des extractibles (tanins condensés)

Séchage après extraction (sixième série)

Cette série de cycles de séchage a été effectuée sur du bois dont les tanins ont été extraits au méthanol. Les échantillons de hêtre sont placés sous agitation dans du méthanol à la température ambiante pendant 6, 12, 24 ou 48 heures. Le séchage a ensuite été réalisé sous atmosphère oxygénée à 50 et 60 °C (tableau 11).

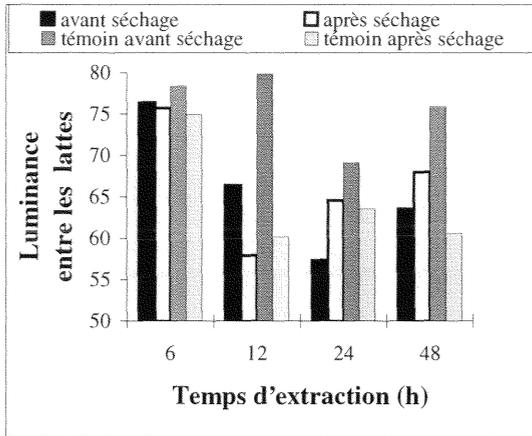
Tableau 11. Caractéristiques des cycles de séchage sur échantillons de hêtre extraits.

cycle	Durée de l'extraction (h)	T (°C)	t (h)
27	6	50	48
28	12	50	48
29	24	50	48
30	48	50	48
31	6	50	48
32	12	50	48
33	24	50	48
34	48	50	48
35	6	60	24
36	12	60	24
37	24	60	24
38	48	60	24

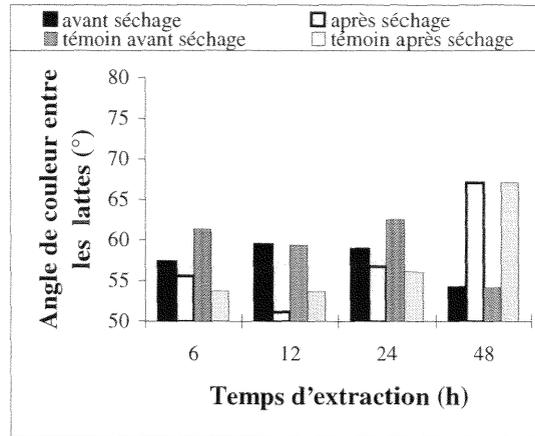
(T : température de séchage. t : temps de séchage)

Pour chaque cycle, nous avons séché un échantillon extrait et un échantillon témoin. Ainsi sur les figures 14, 15 et 16 est représentée l'évolution des coordonnées chromatiques des deux échantillons : avant et après séchage.

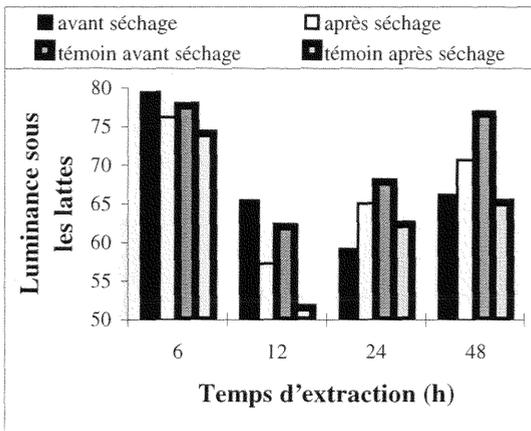
Les figures 14a à 14d montrent les coordonnées chromatiques des quatre premiers cycles de séchage à 50 °C. La figure 14a montre d'abord que la chute de luminance entre les lattes est toujours plus notable dans le cas des échantillons témoins et ensuite qu'après 24 heures d'extraction le bois est plus clair après séchage (augmentation de la luminance). Les mêmes tendances sont observées sous les lattes (figure 14c).



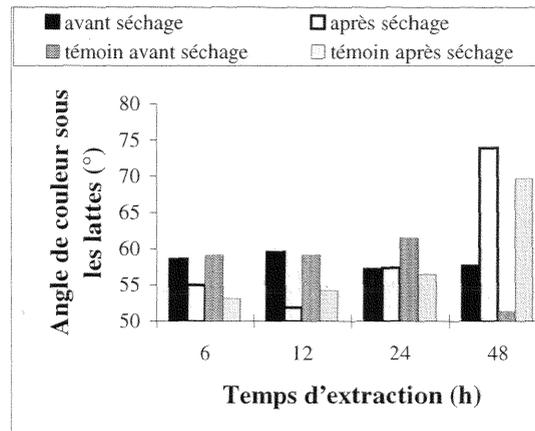
a)



b)



c)



d)

Figure 14: Coordonnées chromatiques lors de séchage sur des échantillons de hêtre sans tanins (série 5, température de séchage 50 °C)

Les mesures de l'angle de couleur effectuées entre les lattes ou sous les lattes (figure 14b et 14d) ne font pas apparaître de différences notables entre les échantillons extraits et les échantillons témoins.

Une autre série de cycles de séchage dans des conditions similaires a été réalisée afin de vérifier l'effet de l'extraction au méthanol sur la discoloration au cours du séchage du hêtre à 50 °C. Les coordonnées chromatiques correspondant à ces cycles de séchage sont reportées sur les histogrammes des figures 15a à 15d. On observe une tendance similaire par rapport aux essais précédents, soit un blanchissement de la surface après 24 heures d'extraction (figures 15a et 15c).

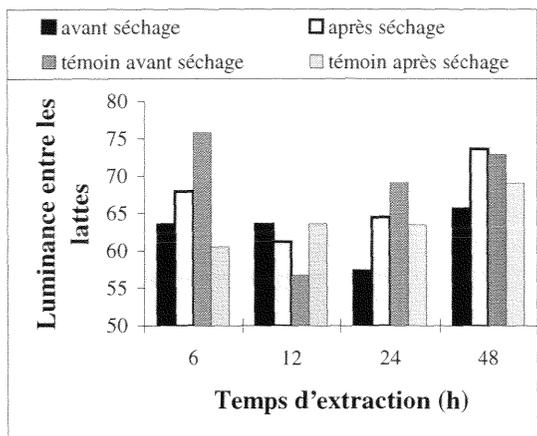
Des essais identiques sont réalisés à une température de 60°C. Les résultats sont reportés sur les figures 16a à 16d. Les écarts sont faibles, mais on observe toutefois une élévation de la luminance sous les lattes (figure 16c), ainsi qu'un rougissement entre lattes (figure 16b) dans le cas des échantillons extraits. Il est intéressant de noter que dans cette série de cycles à 60 °C le séchage a été assez rapide (figures b.15a à b.26b; annexe b.7). Cette vitesse de séchage élevée semble à nouveau participer à la réduction de la discoloration du bois extrait ou non.

Le rôle des extractibles sur la discoloration du hêtre au cours du séchage

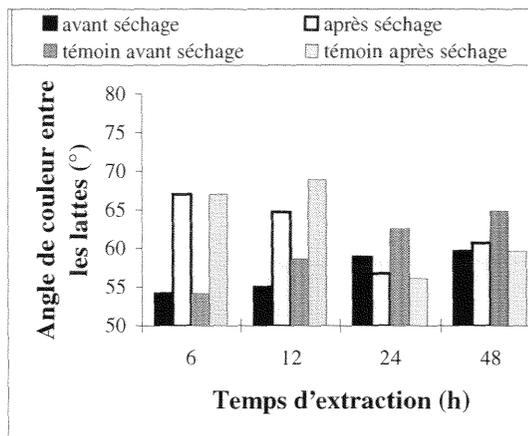
Nous avons montré par des mesures des coordonnées chromatiques, que lors des cycles de séchage à 50 °C en atmosphère oxygénée, les échantillons dont on a extrait tout ou partie des extractibles au méthanol, présentent moins de discoloration et même un éclaircissement de la surface entre les lattes et sous les lattes (figure 14a et 14c et 15a et 15c).

En revanche, lors des cycles de séchage à 60 °C l'effet de l'extraction est assez bien visible sous les lattes mais pas entre les lattes (figure 16a et figure 16c). Ces résultats montrent bien que la cinétique de séchage joue un rôle très important dans le développement de la discoloration du hêtre.

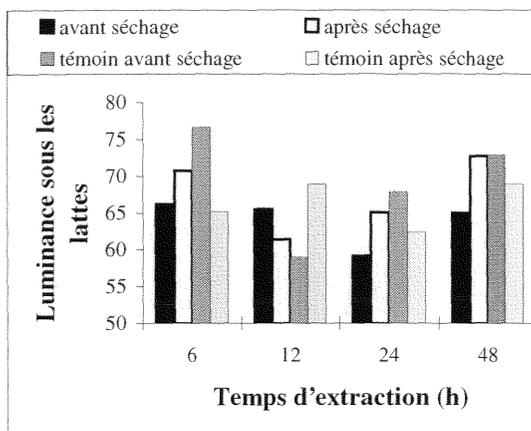
Toutefois, ces résultats montrent que l'extraction au méthanol conduit à une réduction de la discoloration à la surface du bois, ce qui confirme la participation des extractibles tels que les



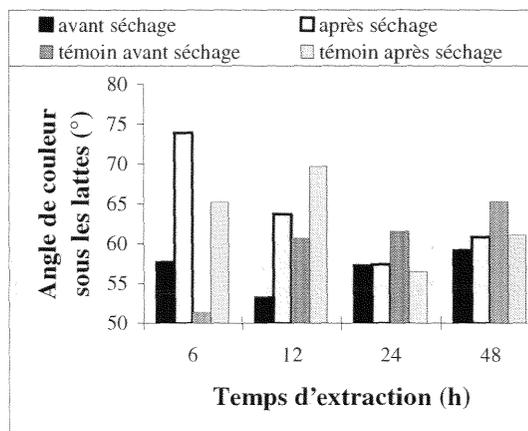
a)



b)

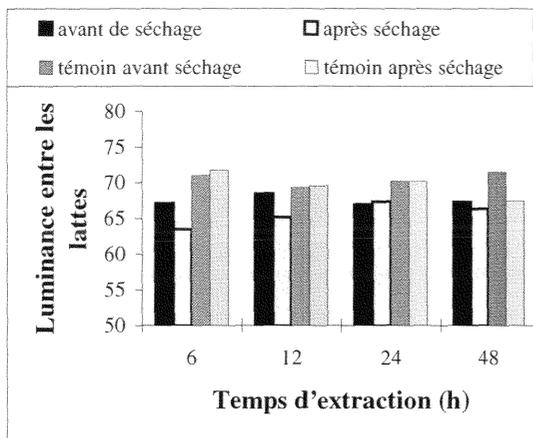


c)

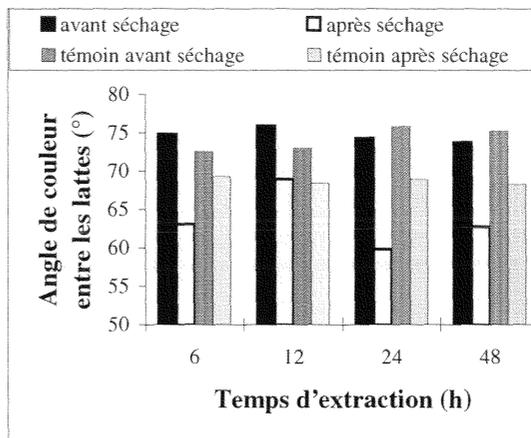


d)

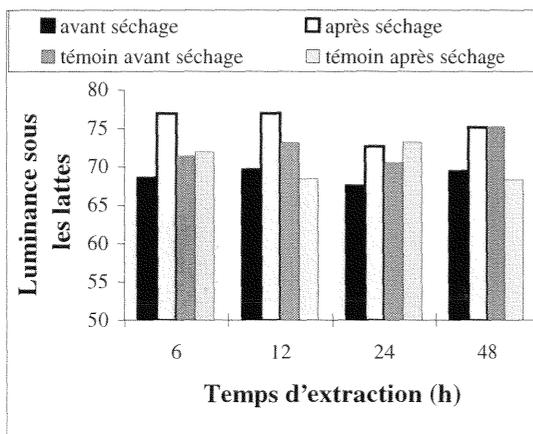
Figure 15: Evolution de la couleur d'échantillons séchés après extractions des tannins (série 5, répétition à 50 °C)



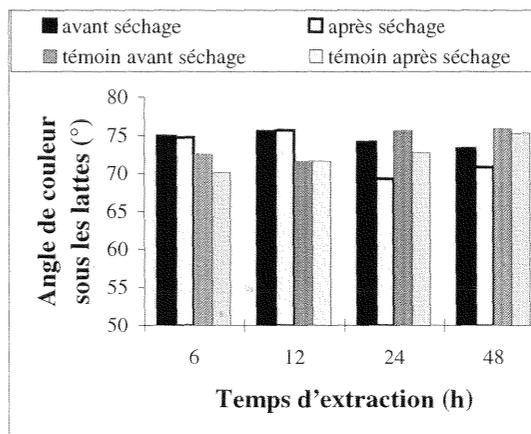
a)



b)



c)



d)

Figure 16: Evolution de la couleur d'échantillons séchés après extraction des tanins (série 5, température de séchage 60 °C)

tanins condensés au mécanisme de discoloration du hêtre au cours du séchage à basse température.

4.2.3.- Mise en évidence de l'oxydabilité des tanins condensés

Afin de vérifier que les tanins condensés sont les composés chimiques à l'origine de la discoloration du hêtre au cours du séchage, nous avons réalisé une série d'expérimentations visant à identifier et quantifier les tanins condensés ainsi que leurs dérivés colorés au cours de la réaction d'oxydation.

Identification et quantification tanins condensés

Des éprouvettes de hêtre sont placées sous agitation dans du méthanol à la température ambiante. Des prélèvements sont régulièrement effectués dans la solution. La figure 17 montre l'augmentation de la teneur en tanins condensés de la solution méthanolique au cours de l'extraction. La teneur en tanins condensés passe de 19 µg/ml (0.03 %/MS) après 6 heures d'extraction à 59 µg/ml (0.06 %/MS) après 48 heures. Une extraction plus complète réalisée sur un échantillon de sciure a permis de déterminer la teneur en tanins condensés de 0.28 % par rapport à la masse anhydre de bois.

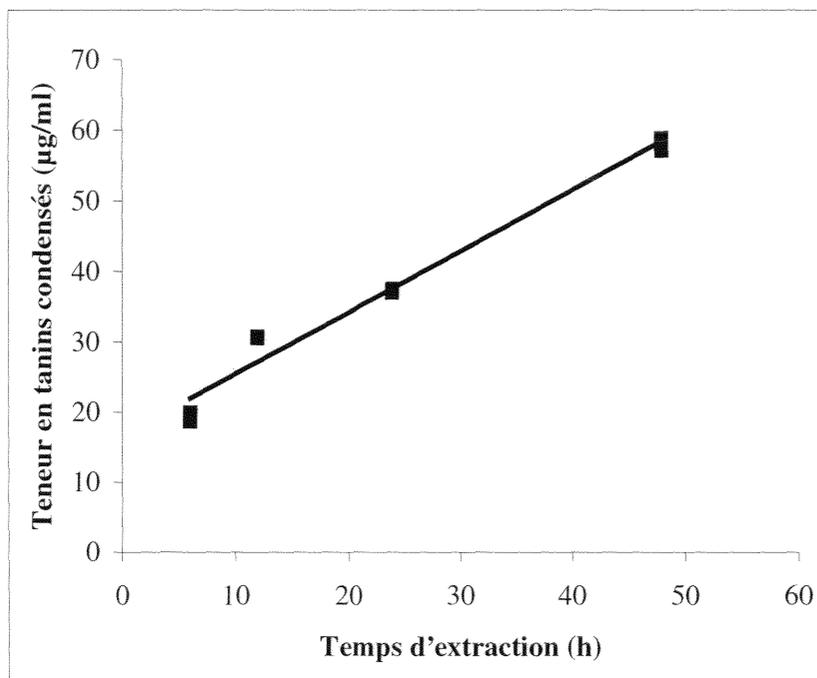
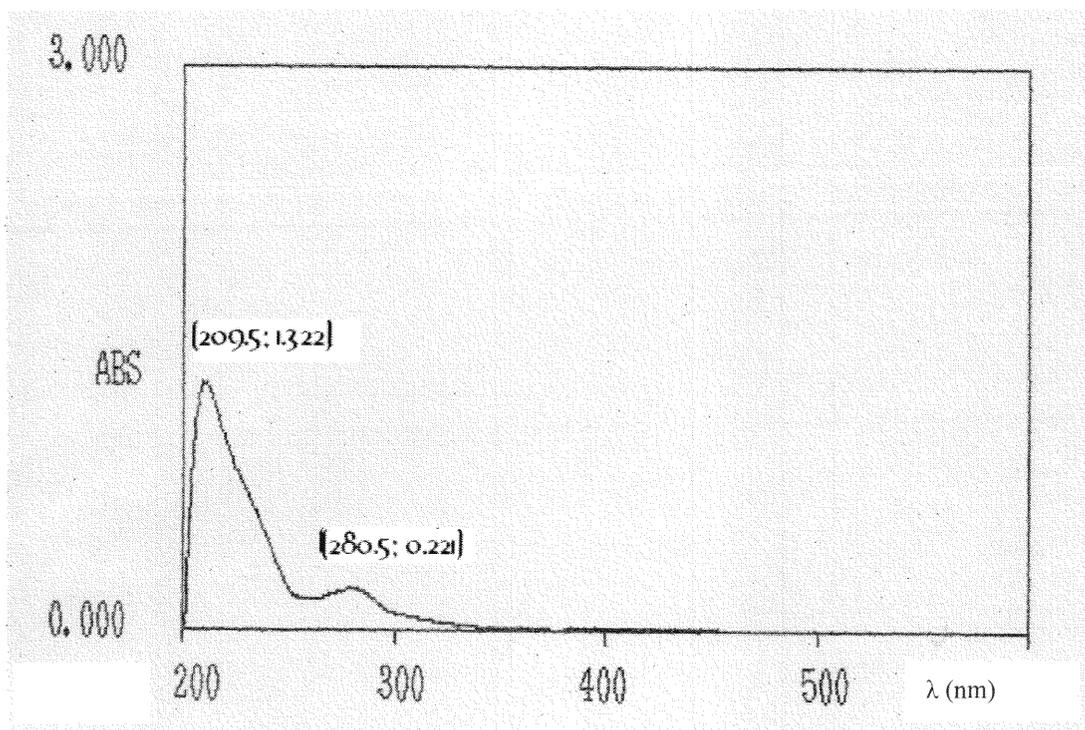


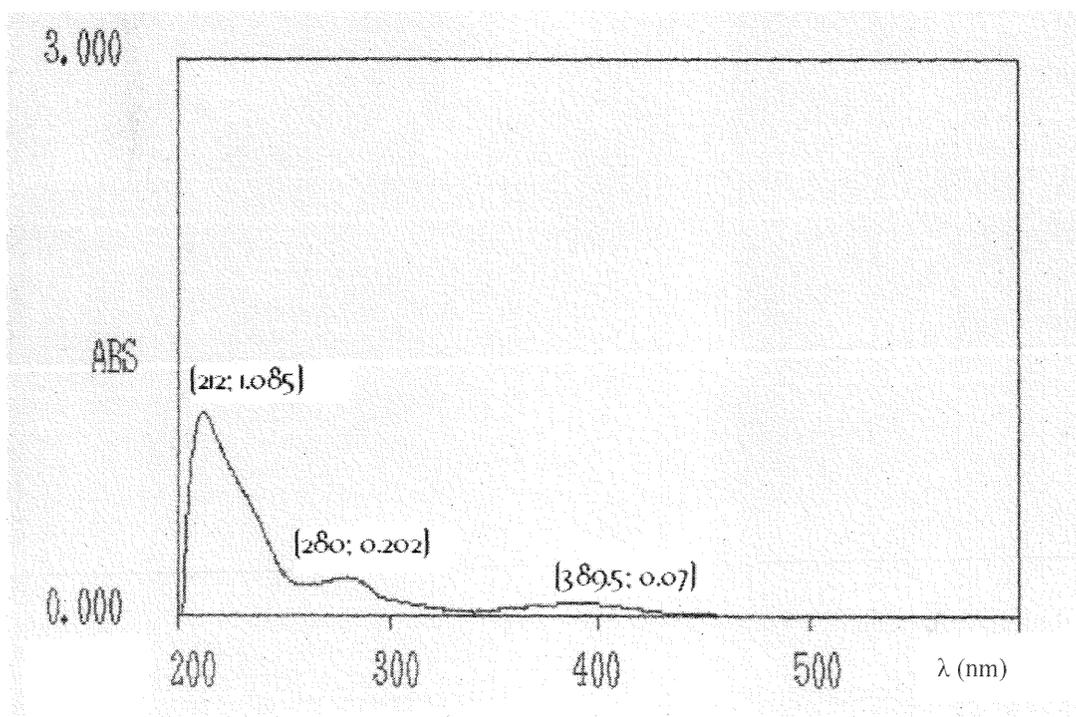
Figure 17 : Evolution de la teneur en tanins condensés de la solution méthanolique au cours d'extraction des éprouvettes de hêtre.

La figure 18 montre les spectres UV-visible réalisés sur les solutions d'extraits. On observe la présence de la bande caractéristique de l'absorbance des noyaux aromatiques à 210 nm et de la bande caractéristique de l'absorbance des polyphénols à 280 nm. Les analyses réalisées au cours de l'extraction montrent également une augmentation de la concentration.

La figure 19 montre les résultats obtenus en CCM sur silice avec les extraits. Après révélation au DMACA, on observe que les polymères proanthocyanidines du hêtre ne migrent pratiquement pas dans ce système de solvant. Par ailleurs, la présence de catéchine est également visualisée, mais très peu d'oligomères (dimères, trimères)



a) avant oxydation



b) après oxydation à 60 °C pendant 320 min

Figure 18 : Spectre d'absorption UV-Visible des extraits méthanoliques de sciure de hêtre avant et après oxydation à 60 °C pendant 320 min

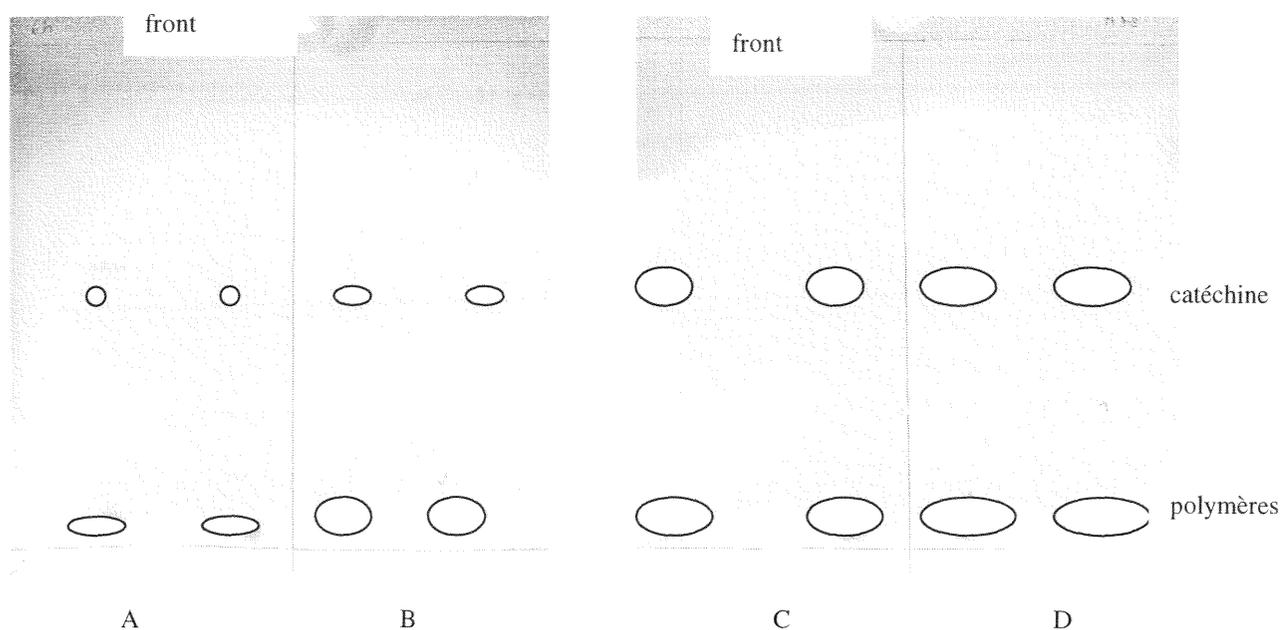


Figure 19 : Chromatographie sur couche mince de silice de la solution méthanolique au cours de l'extraction sur éprouvettes de hêtre .
 Solvant de développement acétone/toluène/acide formique (60 :60 :10 ; v/v)
 Révélateur : DMACA (diméthylaminocinnamaldéhyde à 0,3 %, p/v).

A : 6 h. **B :** 12 h. **C :** 24 h. **D :** 48 h.

Oxydabilité des tanins condensés et leur transformation en pigment anthocianique

Le test consiste à faire barboter de l'oxygène dans la solution d'extrait maintenue à 60°C. La figure 20 montre que la teneur en tanins condensés de la solution d'extrait décroît au cours du temps. La teneur initiale en tanins condensés du hêtre est de 0,28 (%/MS). Après 40 minutes de barbotage, la teneur en tanins condensés est de 0,24 (%MS) et à la fin du test (320 mn), la teneur en tanins condensés est de 0,18 (%MS). Cette baisse de concentration peut-être attribuée à une oxydation chimique des tanins condensés sous l'effet de l'oxygène.

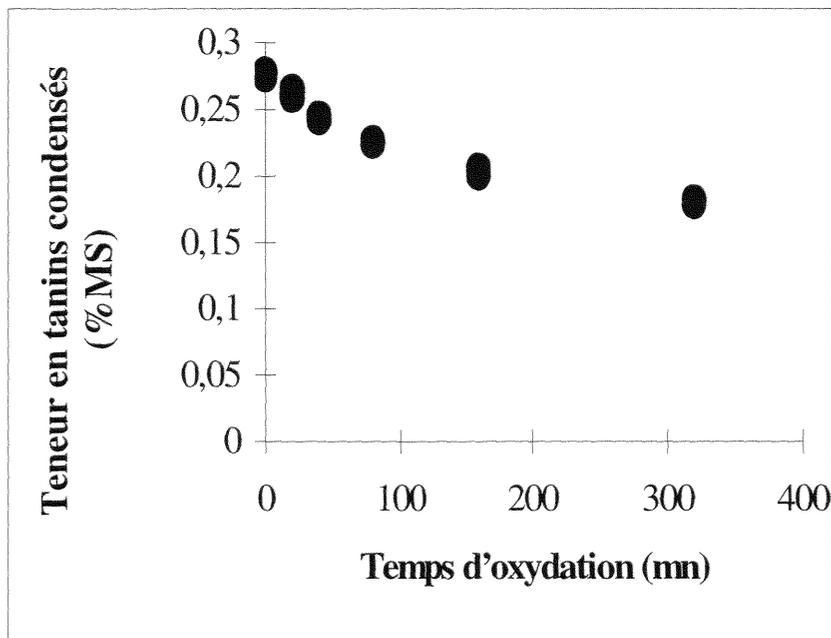


Figure 20 : Effet du barbotage à l'oxygène sur la teneur en proanthocyanidines des extraits de hêtre chauffé à 60 °C.

La figure 21 montre les spectres UV visibles (entre 200 et 600 nm) des extraits de hêtre avant et après chauffage à 60 °C sous atmosphère oxygénée. Les spectres sont caractérisés par un maximum d'absorption vers 210 nm qui est caractéristique des noyaux aromatiques. Puis une autre bande aux environs de 280 nm qui peut caractériser les composés polyphénoliques (tanins et phénols solubles). Au cours du barbotage, on observe une diminution du maximum d'absorption à 280, et l'apparition d'un léger pic dans le visible qui correspond à l'apparition de composés colorés.

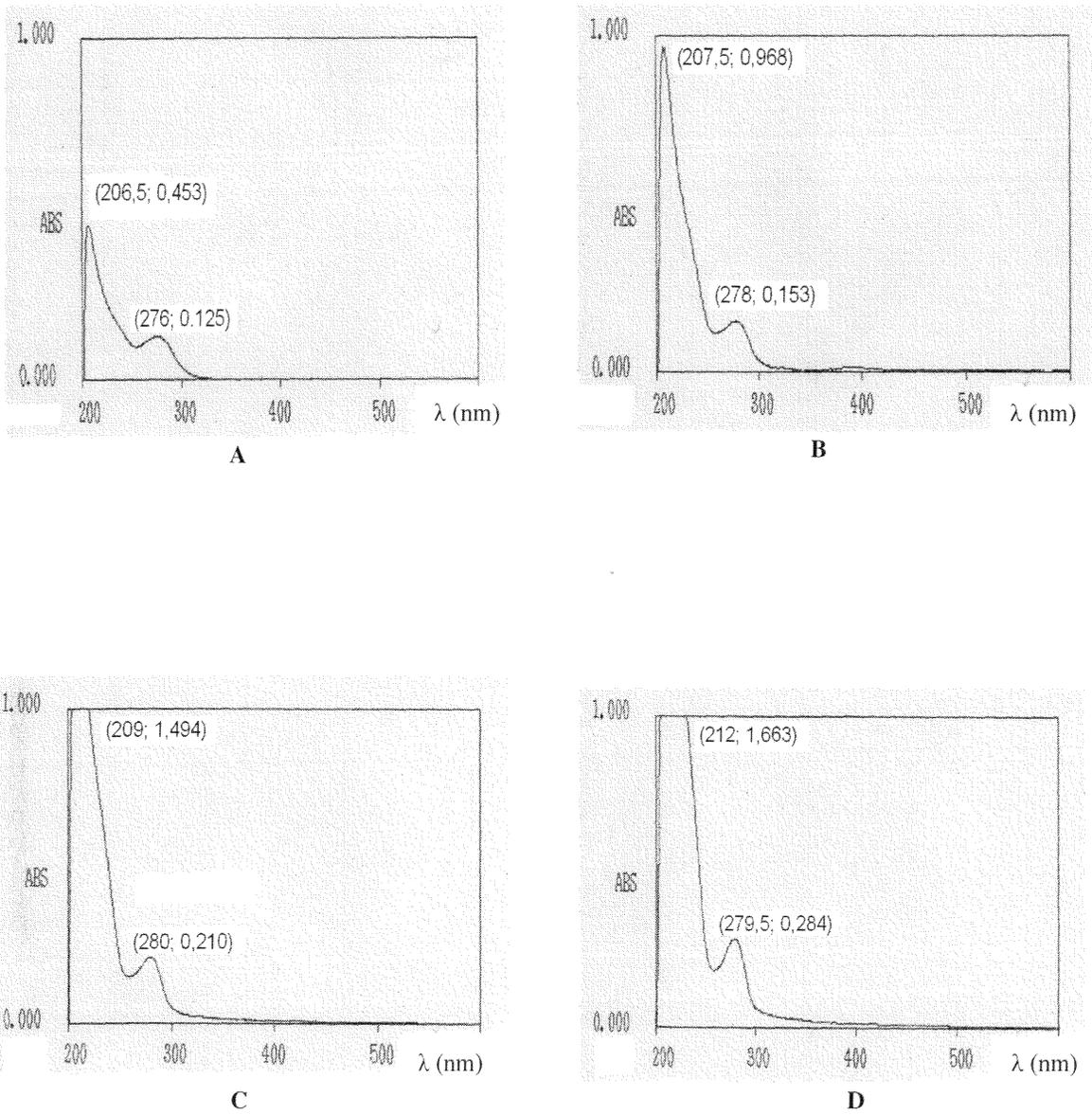


Figure 21: Spectres d'absorption UV Visible réalisés sur la solution méthanolique au cours de l'extraction.

A : 6 h d'extraction

B : 12 h d'extraction

C : 24 h d'extraction

D : 48 h d'extraction

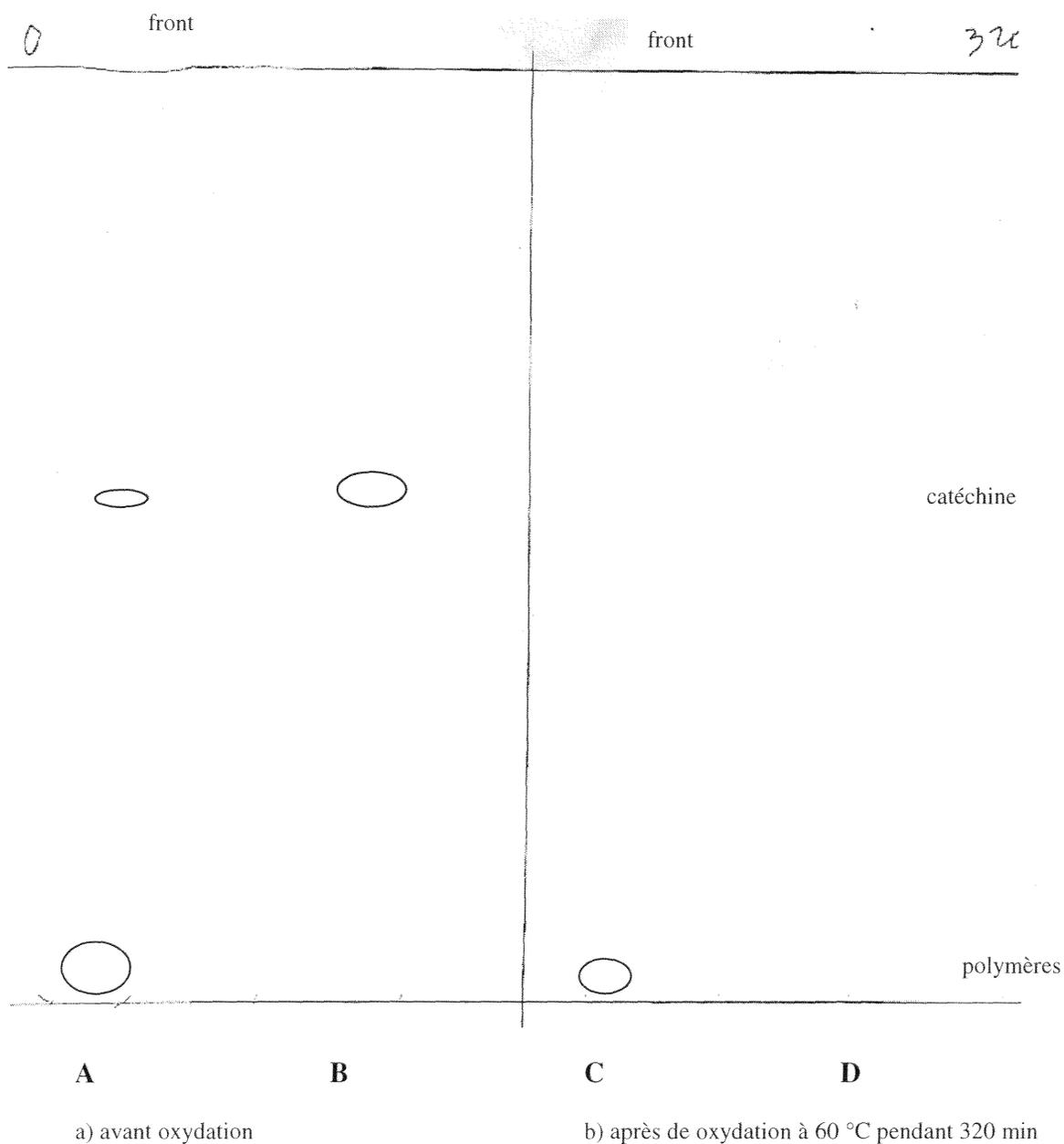


Figure 22 : Chromatographie sur couche mince de silice des extraits de hêtre et de la catéchine (standard) avant et après oxydation à 60 °C

Solvant de développement acétone/toluène/acide formique (60 :60 :10, v/v)

Révélateur DMACA (diméthylaminocinnamaldéhyde à 0,3 %, p/v).

A : extraits de hêtre avant oxydation

B : catéchine (standard) avant oxydation

C : extraits de hêtre après oxydation à 60 °C pendant 320 min

D : catéchine (standard) après oxydation à 60 °C pendant 320 min

Des caractérisations chromatographiques sur CCM (figure 22) ont également été réalisées sur des extraits et sur une solution de catéchine avant et après barbotage sous oxygène à 60 °C. Dans les deux cas on observe la disparition de la catéchine et d'une partie des proanthocyanidines ce qui permet de penser à un phénomène oxydatif plus net sur les monomères (catéchine) que sur les polymères proanthocyaniques.

Par ailleurs lorsque nous avons effectué le test d'identification des tanins par chauffage au bain-marie à 100 °C d'un mélange composé de 10 ml d'extrait, 5 ml de butanol et 0,5 ml de HCl 2N, nous avons observé la formation d'une coloration rouge-violette ce qui tend à montrer la présence de proanthocyanidines dans l'extrait méthanolique de sciure de hêtre.

La chromatographie de l'extrait coloré par CCM sur cellulose en présence du solvant de Forestal (HCl-CH₃COOH-H₂O, 3:1:20, v/v) permet de caractériser surtout un pigment anthocyanique, la cyanidine, et très peu de delphinidine. Ce résultat constitue la preuve incontestable de la présence de tanins condensés dans le hêtre, du type proanthocyanidines.

4.2.4.- Le mécanisme à l'origine de la discoloration du hêtre au cours du séchage

Ces résultats sont en accord avec les discolorations observées au cours du séchage du hêtre. Ainsi la présence des tanins condensés semble être à l'origine de la discoloration du hêtre au cours du séchage.

Le phénomène oxydatif visualisé au séchage à 60 °C concerne surtout la catéchine monomère et une partie des proanthocyanidines polymérisées (Figure 23). L'action de l'oxygène concerne essentiellement le groupement orthodiphénolique du noyau B, qui se transforme en quinone, laquelle peut se polymériser ultérieurement en produits colorés. La coloration brune peut également résulter de l'action des quinones obtenues avec les aminoacides présents dans le bois.

La vitesse de l'oxydation est lente à pH voisin de la neutralité ce qui est expliqué par la courbe de la figure 20, mais elle serait nettement plus rapide à pH plus alcalin.

Quant à l'action conjuguée d'une température élevée et d'un pH acide, celle ci concerne exclusivement les proanthocyanidines qui sont hydrolysées et oxydées en pigments anthocyanidines (figure b.1, annexe b.1).

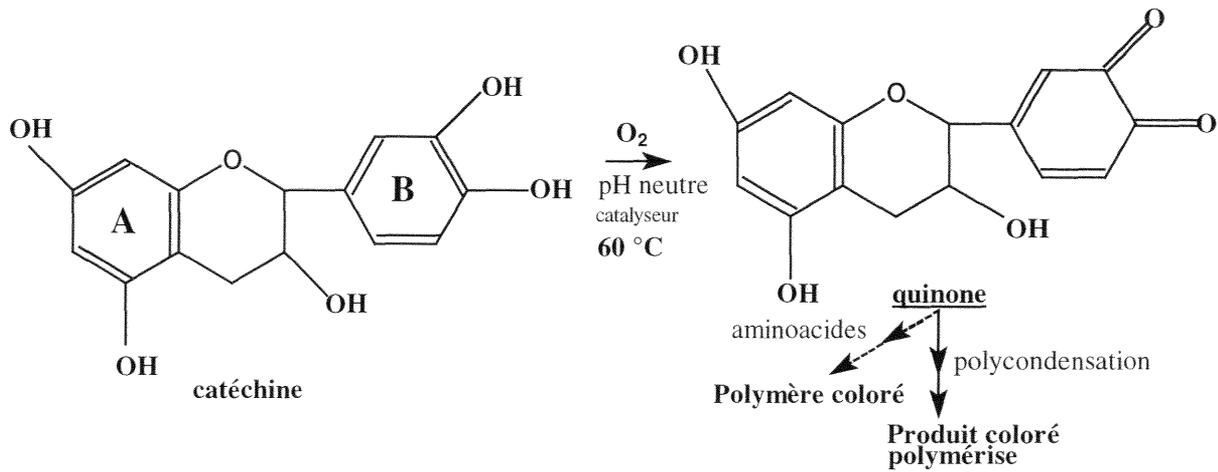


Figure 23 : Transformation oxydative d'une molécule de catéchine en quinone. La quinone se polymérise à température élevée en produit coloré. L'action de la quinone avec les aminoacides du bois peut conduire à des polymères colorés.

V CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les tanins condensés sont probablement les précurseurs du phénomène oxydatif observé au cours de séchage du hêtre à des températures inférieures à 60 °C. La catéchine monomère sous l'action de l'oxygène se transforme en quinone qui se polymérise ensuite en produits colorés. De l'action des quinones avec les aminoacides du bois peut également résulter la discoloration.

La réaction d'oxydation est favorisée par la température et elle peut apparaître en présence d'oxygène pur dès 30 °C. Toutefois à l'action de la température il faut associer le rôle de l'eau libre qui favorise l'extraction et la migration des tanins condensés au voisinage de la surface libre du bois où la concentration en oxygène et la température ont les valeurs les plus élevées.

En définitive, le séchage doit être effectué rapidement et à basse température. Ceci est difficile à réaliser dans un séchoir convectif et peut être obtenu dans un séchoir à vide. Toutefois le coût de fonctionnement de ce dernier est beaucoup plus élevée et pour réduire la discoloration voire l'éliminer il suffit d'éliminer un des éléments qui intervient au niveau de la réaction d'oxydation. Il peut donc s'agir des tanins en envisageant une extraction mais aussi de l'oxygène en imaginant une réaction de consommation beaucoup plus rapide que celle d'oxydation des extraits. C'est dans cette voie que nous pensons poursuivre nos travaux de recherches sur la discoloration du hêtre au cours de son séchage convectif.

VI CONCLUSION GENERALE

A l'issue de cette recherche nous pouvons affirmer que nous disposons désormais de certains éléments en vue d'assurer un séchage de qualité du hêtre dans un séchoir convectif basse et moyenne température. Dans les conditions où le séchoir convectif est homogène nous disposons d'une expression de la vitesse de séchage permettant de conduire avec précision le séchage à partir des mesures de la vitesse, de la température et de l'humidité de l'air extérieur circulant au sein de la pile.

La procédure classique de séchage consistant à élever la température du séchoir tout en maintenant une humidité extérieure élevée pour éviter les fissurations liées à un retrait trop rapide n'est sûrement pas la voie optimale pour éviter le phénomène de discoloration du hêtre. En effet, ce phénomène est liée à une oxydation des tanins condensés dont la migration est favorisée lorsque le bois est et reste humide durant une période importante du séchage. Dans la mesure où il est difficile de jouer sur les deux paramètres température et humidité relative de l'air sans favoriser l'un ou l'autre des deux phénomènes modifiant la qualité du bois séché, la solution préconisée pour limiter la discoloration est l'élimination de l'oxygène, soit dans la phase gazeuse externe, soit au niveau de la phase aqueuse interne au bois à sécher. Ce sont les deux orientations que nous souhaitons examiner dans la poursuite des recherches sur l'optimisation du séchage du hêtre.

LITERATURE CITEE

- ARBEZ, M.; LACAZE, J-F. 1998.** Les ressources génétiques forestières en France. INRA, Paris.
- AVRAMIDIS, S., ELLIS, S., LIU, J. 1993.** The alleviation of brown in hem- fir through manipulation of kiln-drying schedules. *Forest Prod. J.* 43(10):65-69
- BARY-LENGER, A.; PIERSON, J.; PONCELET, J. 1999.** Transformation, utilisation et industries du bois en Europe. Editions du Perron, Liège, Belgique.
- BENOIT, C. ; FOUCAUT, J. 1996.** Discoloration du hêtre au séchage. Projet de fin d'étude. ENSTIB, France.
- CHARRIER, B. 1992.** Les discolorations brunes du chêne apparaissant pendant le séchage artificiel: Etude fondamentale et mise en place de techniques de prévention. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France.
- CHARRIER, B.; HALUK, J.P.; JANIN, J. 1992.** Prevention of brown discoloration in European oakwood occurring during kiln drying by a vacuum process: Colorimetric comparative study with a traditional process. *Holz als Roh und Werkstoff* 50:433-437.
- CHARRIER, B.; HALUK, J.P.; METCHE, M.. 1995.** Characterization of European oakwood constituents acting in the brown discoloration during kiln drying. *Holzforschung* 49(2):168-172.
- FENGEL, D. ; WEGENER, G. 1984.** Extractives. In wood, chemistry, ultrastructure, reactions. W. de G., Berlin, 1984.
- GUILMAIN, C.; BAIXERAS, O.; JOMAA, W. 1996.** Discontinuous and convective vacuum drying of oak: experimental and modelling studies. 5th. International IUFRO Wood Drying Conference. Proceedings 1: 147-157.
- HALUK, J.P. 1983.** Les constituants chimiques du bois. Le materiau bois. ARBOLOR, France.
- HALUK, J.P. 1999.** Communication personnelle.
- IRMOULI, M. 1998.** Contribution à la caractérisation chimique des eaux d'étuvage du bois de hêtre et de leur charge de pollution: Elaboration d'un traitement d'épuration par l'ozone, et par coagulation-floculation et décantation. Thèse de doctorat (confidentiel), Université Henri Poincaré, Nancy I, France.
- JACQUIOT, C.; TRENARD, Y.; DIROL, D. 1973.** Atlas d'anatomie des bois des angiospermes (essences feuillus). Tome I, CTBA, Paris.

- JOYET, P. ; MEUNIER, T. 1996.** Drying green oak under vacuum with superheated steam without discoloration and drawback : Industrial Results. 5th. International IUFRO Wood Drying conference 1 : 169-176
- JOYET, P. 1998.** Baguettes de séchage: Comment réduire le risque de taches sur le hêtre. CTBA-Info 73: 2-5.
- KLUMPERS, J. 1994.** Le déterminisme de la couleur du bois de chêne. Etude sur les relations entre la couleur et des propriétés physiques, chimiques et anatomiques ainsi que des caractéristiques de croissance. Thèse de doctorat, Ecole Nationale du Génie Rural des Eaux et des Forêts ENGREF, Nancy, France.
- KOCH, G. ; BAUCH, J. 2000.** Discoloration in European beechwood (*Fagus sylvatica* L.) during storage and drying. Proceeding of the 2nd Cost E15-Worshop on Quality drying of hardwood : (pp 1-5). University of West Hungary, Hungary.
- KREBER, B.; BYRNE, A. 1996.** Production of brown stain in hemlock logs and lumber during storage. Forest Prod. J. 46(4):53-58.
- KREBER, B.; HASLETT, A.N. 1997a.** A study of some factors promoting kiln brown stain formation in radiata pine. Holz als Roh und Werkstoff 55:215-220.
- KREBER, B.; HASLETT, A.N. 1997b.** Compression-rolling reduces kiln brown stain in radiata pine sapwood. Forest prod. J. 47(7/8):59-63.
- KREBER, B.; FERNANDEZ, M.; McDONALD, A.G. 1998.** Migration of kiln brown stain precursors the drying of radiata pine sapwood. Holzforschung 52(4):441-446.
- KREBER, B.; HASLETT, A.N.; McDONALD, A.G. 1999a.** Kiln brown stain in radiata pine: A short review on cause and methods for prevention. Forest Prod. J. 49(4):566-70.
- KREBER, B.; HASLETT, A.N.; McDONALD, A.G. 1999b.** Use of sodium dithionite for controlling kiln brown stain development in radiata pine sapwood. Forest Prod. J. 49(1):57-62.
- LUOSTARINEN, K. ; MOTTONEN, V. ; ASIKAINEN, A. ; LAHTINEN, T. ; TOLONEN, Y. 2000.** Birch (*Betula pendula*) wood discoloration during drying. Proceeding of the 2nd Cost E15-Worshop on Quality drying of hardwood (pp 1-8). University of West Hungary, Hungary.
- McDONALD, A.G.; FERNANDEZ, M.; KREBER, B.; LAYTNER, F. 2000.** The chemical nature of kiln brown stain in radiata pine. Holzforschung 54(1):12-22.
- MILLER, D.; SUTCLIFFE, R.; THAUVETTE, J. 1990.** Sticker stain formation in hardwoods: Isolation of scopoletin from sugar maple (*Acer saccharum*). Wood Sci. Technol. 24: 339-344.

- SCHMIDT, E.L.; AMBURGEY, T.L. 1994.** Prevention of enzyme stain of hardwoods by log fumigation. *Forest Prod. J.* 44(5):32-34.
- SCHMIDT, E.L.; AMBURGEY, T.L.; KITCHENS, S.C. 1998.** Mill trial confirms control of lumber graystain and sticker shadows after fumigation of southern hardwood logs with methyl bromide. *Forest Prod. J.* 48(6):50-52.
- SMITH, W.B.; HERDMAN, D.J.. 1996.** An investigation of board color and sticker stain in hard maple. 5th International IUFRO Wood Drying Conference 1:325-334. Quebec, Canada.
- TERZIEV, N.; BOUTELJE, J.; SODERSTROM, O. 1993.** The influence of drying schedules on the redistribution of low-molecular sugars in *Pinus sylvestris* L. *Holzforschung* 47(1):3-8.
- TERZIEV, N. 1995.** Migration of low-molecular sugars and nitrogenous compounds in *Pinus sylvestris* L. during kiln and air drying. *Holzforschung* 49(6):565-574.
- TORELLI, N. 1984.** The ecology of discolored wood as illustrated by beech (*Fagus sylvatica* L.). *IAWA Bulletin* 5(2):121-127.
- VENET, J. 1986.** Identification et classement des bois français. ENGREF, Nancy.
- WASTNEY, S.; BATES, R.; KREBER, B.; HASLETT, A. 1997.** The potential of vacuum drying to control kiln brown stain in radiata pine. *Holzforschung und Holzverwertung* 3: 56-58.
- ZIGRIKAS, L.. 2000.** Sticker staining in iroko flooring strips (a practical solution). Proceeding of the 2nd Cost E15-Worshop on Quality drying of hardwood : (pp 1-4). University of West Hungary, Hungary.

ANNEXES

Part B: DISCOLORATION DU HETRE AU COURS DU SECHAGE A BASSE TEMPERATURE

Annexe b.1: Les extractibles du hêtre *Fagus sylvatica*

Les extractibles sont des substances solubles localisées dans les cavités des cellules du bois, les cellules parenchymateuses longitudinales et les rayons parenchymateux du hêtre. Le bois du hêtre présente une faible teneur en extractibles. Lorsque l'extraction est effectuée à l'eau chaude, la quantité d'extraits est plus élevée (Tableau b.1).

Tableau b.1: Extractibles du bois de hêtre (% par rapport à la masse de bois sec)

Extraction	%MS	Auteurs
Ethanol-Benzène	0,8	Kurschner-Meléérova, 1965 (en Fengel et Wegener, 1984)
Eau chaude	2,8	Haluk, 1983

Selon la littérature, les tanins condensés sont les principaux composés extractibles présents dans le bois du hêtre. Les teneurs en tanins hydrolysables sont négligeables (Scalbert et al. 1989).

Les tanins condensés (ou proanthocyanidines) sont des substances polyphénoliques hétérogènes de faible masse moléculaire comprise entre 500 et 3000. Ce sont des oligomères et polymères de degré de polymérisation variable, dont les unités monomériques sont :

- a) flavane 3-ol,
- b) 5-déoxyflavane 3-ol et
- c) flavane 3-4 diol.

Selon Scalbert et al. (1989), la teneur en phénols totaux dans le bois du hêtre est de 1,6 mg/g (méthode Folin-Ciocalteu) et la quantité de proanthocyanidines est de 0,17 mg/g (méthode vanilline-acide sulfurique). Selon Irmouli (1998), les tanins condensés peuvent être clivés par hydrolyse acide et conduire à la formation de produits amorphes insolubles, et à de faibles quantités d'anthocyanidines de coloration rouge, telles que la cyanidine. (figure b.1).

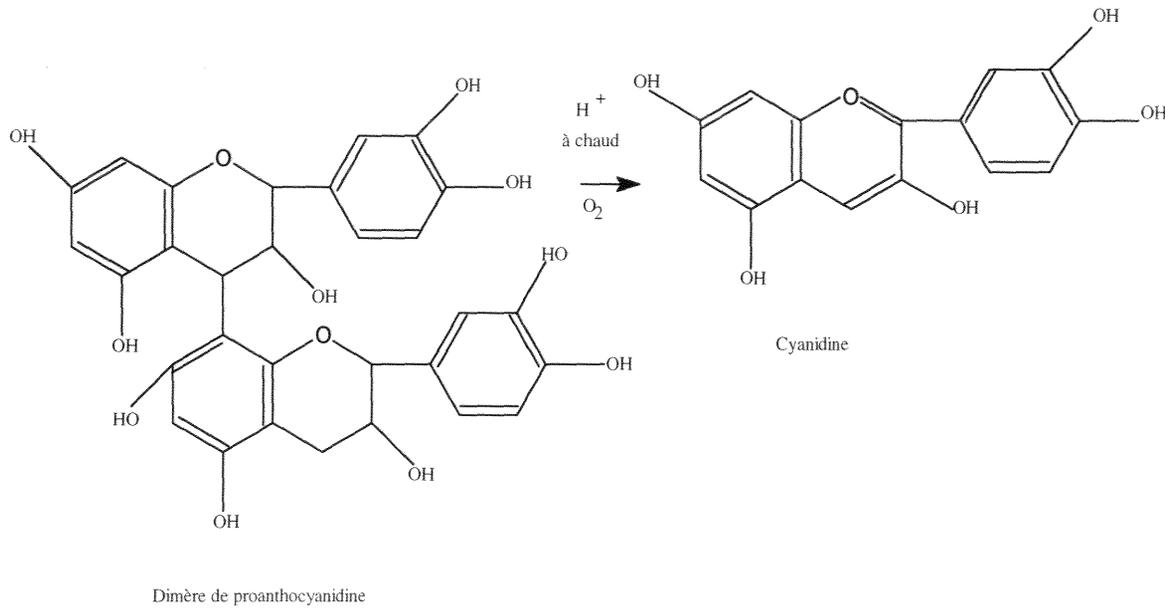


Figure b.1 : Transformation oxydative d'une molécule dimère de proanthocyanidine en milieu acide avec formation du pigment anthocyanique correspondant (étuvage du hêtre). (Irmouli, 1998)

Annexe b.2: Mesure des coordonnées chromatiques.

Klumpers, 1994, a montré que malgré l'hétérogénéité du matériau, le système CIEL*a*b* représente de façon performante la mesure de la couleur du bois. Dans notre étude, un chromamètre fonctionnant avec le système CIEL*a*b* est utilisé pour la quantification des coordonnées chromatiques du bois. Klumpers, 1994, montre que la luminance L* et l'angle de couleur h sont les coordonnées chromatiques les plus performantes pour la description de la couleur du bois solide.

Dans le système CIElab, la couleur est décrite suivant trois coordonnées colorimétriques L* a* et b*.

L*: Luminance variant de 0 à 100 (0 : noir parfait, 100 : blanc parfait)

a*: Coordonnée sur l'axe vert-rouge (+a: direction du rouge; -a: direction du vert)

b*: Coordonnée sur l'axe bleu-jaune (+b: direction du jaune; -b: direction de bleu)

L'angle de couleur est défini pour la variable h

$$h = \arctan(b^*/a^*) \quad (b.1)$$

La luminance est l'intensité lumineuse de la couleur, son degré de clarté.

L'angle de couleur c'est la tonalité (ou teinte) de la couleur. Un angle de couleur élevée se traduit comme un jaunissement et un angle de la couleur faible indique un rougissement (figure b.2).

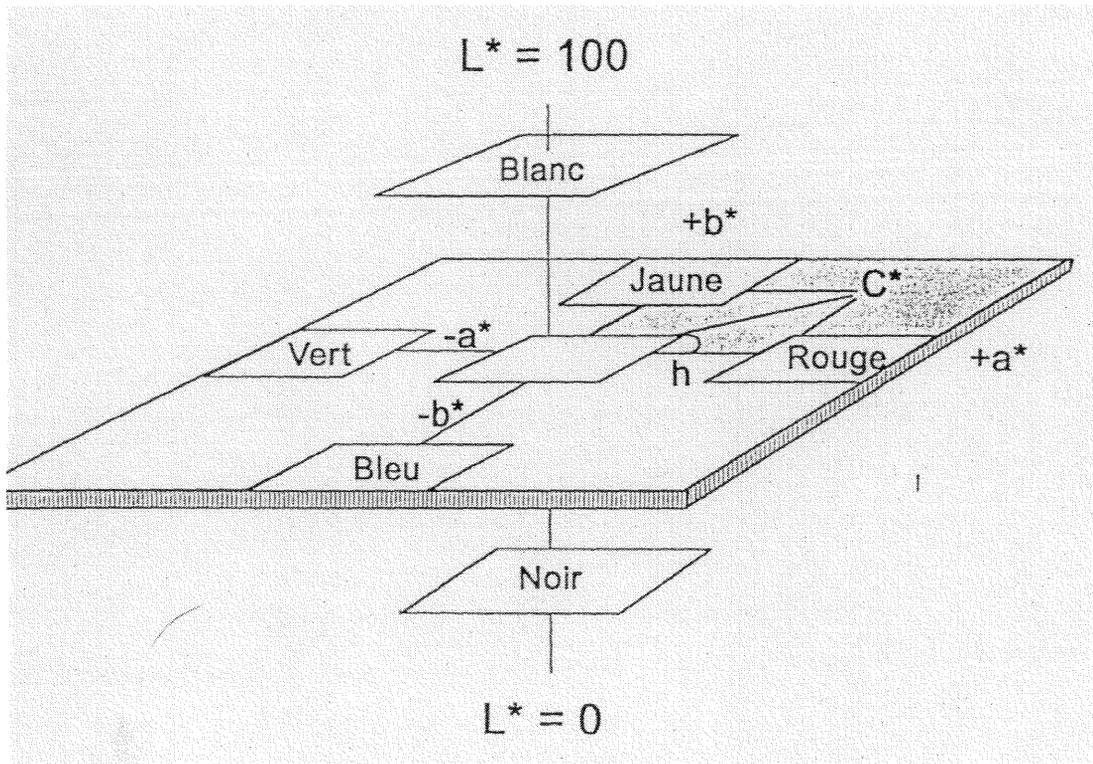


Figure b.2 : Volume des couleurs CIE $L^*a^*b^*$. Description des coordonnées chromatiques $L^* a^* b^*$ (Klumpers, 1994)

Annexe b.3. Détermination de la teneur en tanins condensés (Méthode Irmouli, 1998)

A) Dosage sur sciures

La méthodologie proposée (Haluk, 1999) consiste à placer 2 g de sciure de hêtre dans 300 ml de méthanol. Le tout est agité (avec un agitateur magnétique) et maintenu à 20°C pendant 24 heures. Afin de limiter les réactions d'oxydation des extraits au cours de l'extraction, l'ensemble est placé sous vide. La solution est filtrée et diluée 6 fois (1 ml d'extrait dans 5 ml de méthanol).

A 10 ml d'extrait sont ajoutés 5 ml de méthanol et 2,5 ml de solution DMACA. Le mélange est incubé 20 minutes à température ambiante. L'absorbance est ensuite mesurée à 643 nm au spectrophotomètre. La teneur en tanins condensés est déterminée par rapport à une courbe étalon préparée à partir de concentrations connues en D catéchine.

Le réactif DMACA est préparé fraîchement en solubilisant 0.3 % (p/v) de DMACA dans un mélange de méthanol- HCl 6N (1/1; v/v).

B) Dosage sur les échantillons séchés

Certaines extractions sont réalisées sur des échantillons de bois massif. Les méthodologies d'extraction et de dosage sont identiques. Seule la quantité de solvant est ajustée de manière à ce placer sur la courbe d'étalonnage.

Réactifs:

DMACA (4-diméthylaminocinnamaldéhyde).

D-Catéchine

HCl 6N

Méthanol

C) Etalonnage. (Méthode DMACA)

100 mg de D(+) catéchine sont dissous dans un litre de méthanol. Cette solution mère est diluée avec HCl-méthanolique 3N, afin d'obtenir une gamme de concentrations comprises entre 0 et 7 µg/ml.

A 3 ml de chaque échantillon sont ajoutés 2 ml de réactif DMACA. Le mélange réactionnel est laissé au repos pendant quinze minutes à température ambiante. La détermination de l'absorbance de la coloration bleu vert résultante est effectuée immédiatement au spectrophotomètre à 635 nm (Figure b.3).

Réactifs:

HCl-méthanolique 3N (25 ml de HCl concentré complétés à 100 ml avec du méthanol).

DMACA (4-diméthylaminocinnamaldéhyde)

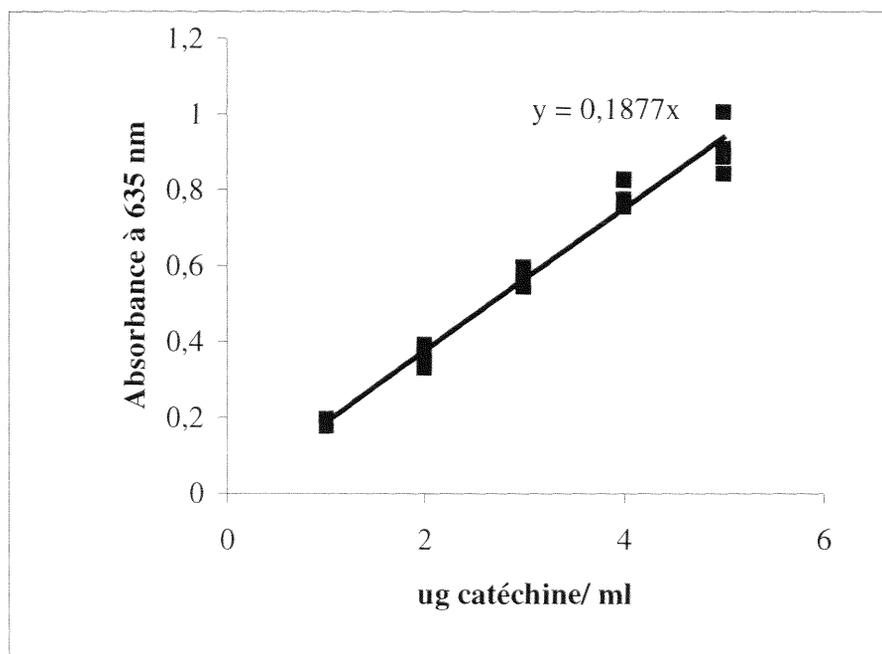


Figure b.3 : Courbe d'étalonnage pour le dosage des tanins condensés (D(+) catéchine)..
Méthode spectrophotométrique au p-N, N-diméthylaminocinnamaldéhyde.

Annexe b.4: Chromatographie sur couche mince.(Méthode CCM-DMACA)

La nature des tanins condensés est déterminée par séparation en chromatographie sur couche mince (CCM). Un petit volume d'extrait est déposé à 1 cm du bord inférieur de la plaque. Ce dépôt qui forme une tache de 1 à 3 mm de diamètre est réalisé avec un microcapillaire. La plaque est ensuite placée dans une cuve contenant l'éluant. Après évaporation du solvant, la révélation post-chromatographique des composés est réalisée par pulvérisation d'une solution de DMACA.

La séparation et l'identification des tanins condensés est obtenue par CCM de silice. Le solvant utilisé est une solution de: acétone/toluène/acide formique (60:60:10; v/v). Le témoin utilisé est la D(+) catéchine. La révélation des plaques est effectuée par pulvérisation de 4-diméthylaminocinnamaldéhyde (DMACA), qui se traduit par une coloration bleu-vert des proanthocyanidines. Le révélateur DMACA est préparée fraîchement comme précédemment.

Annexe b.5 : Cycles de séchage en atmosphère désoxygénée (série 3)

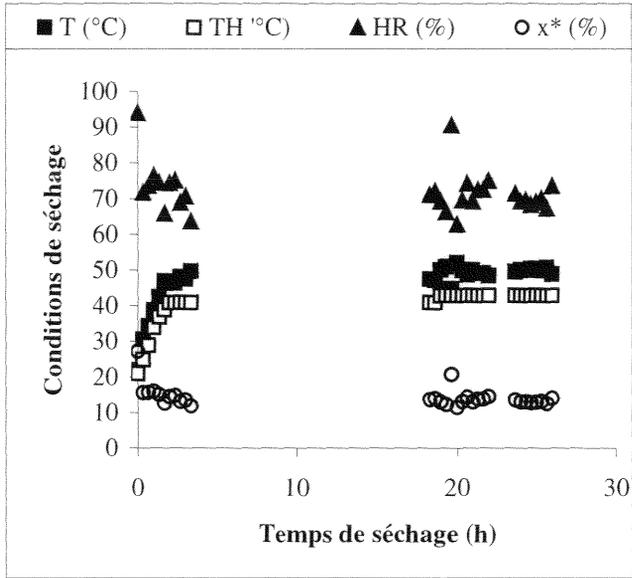


Figure b.4 : Cycle 16

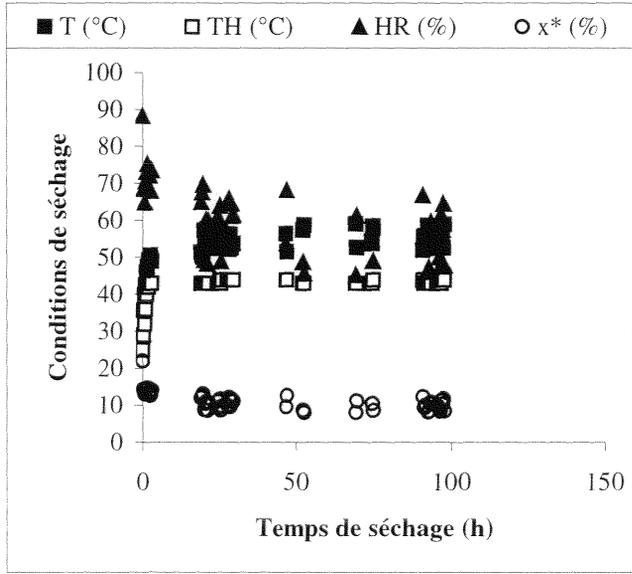


Figure b.5 : Cycle 17

Annexe b. 6: Evolution de la luminance (série 4)

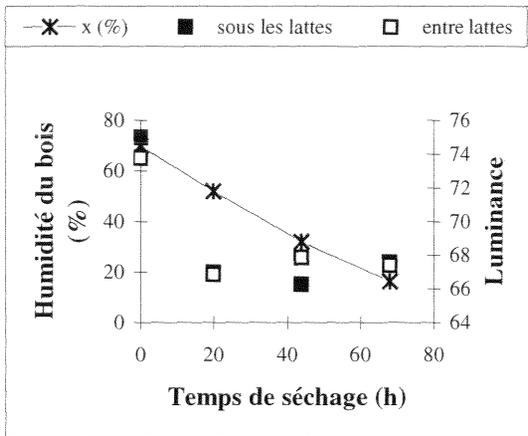


Figure b.6 : cycle 18

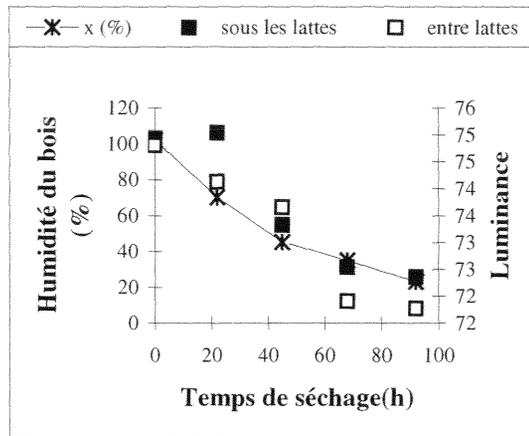


Figure b.7 : Cycle 19

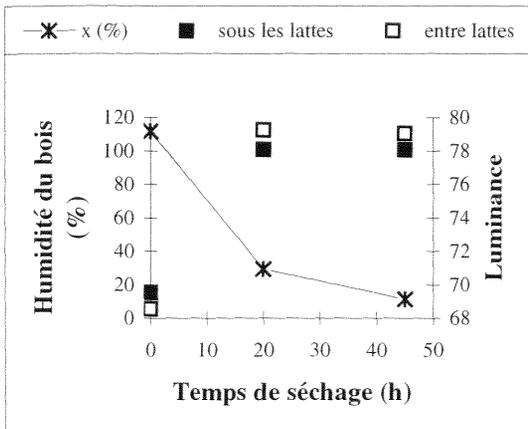


Figure b.8 : Cycle 20

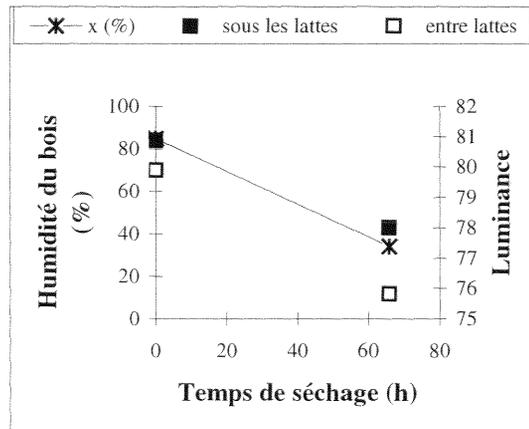


Figure b.9 : Cycle 21

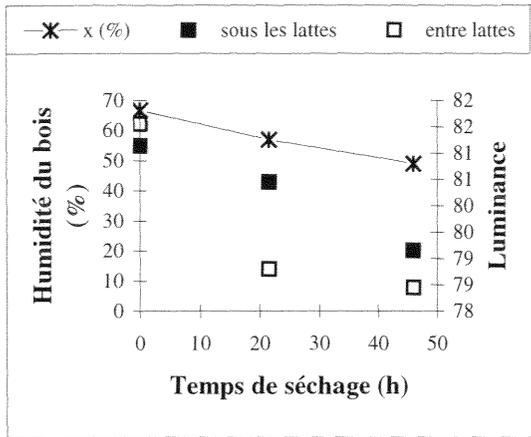


Figure b.10 : Cycle 22

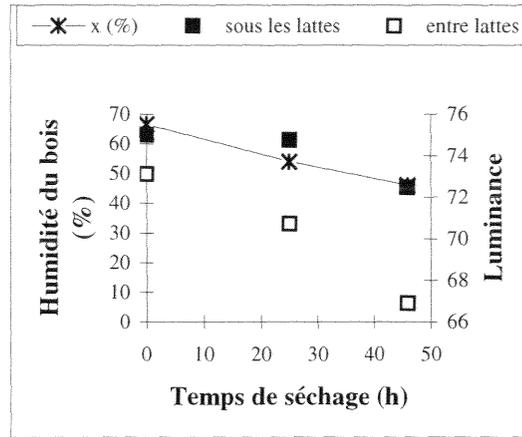


Figure b.11 : Cycle 23

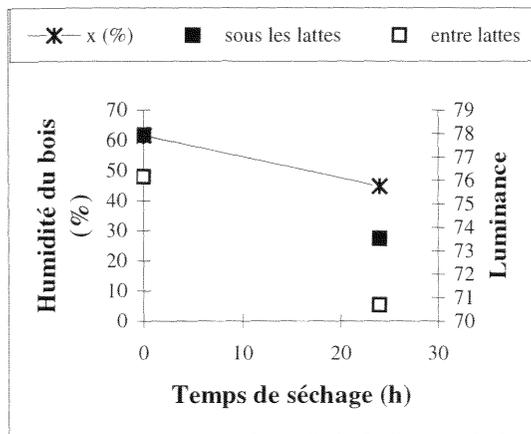


Figure b.12 : Cycle 24

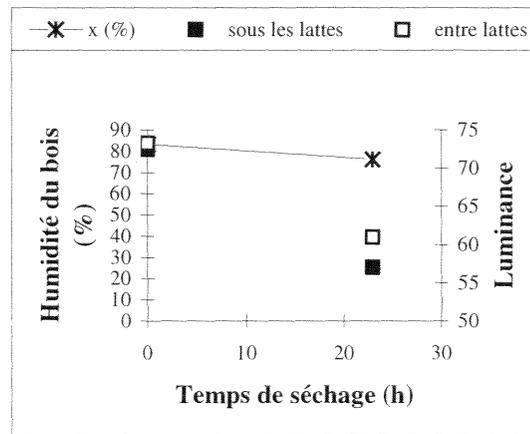


Figure b.13 : Cycle 25

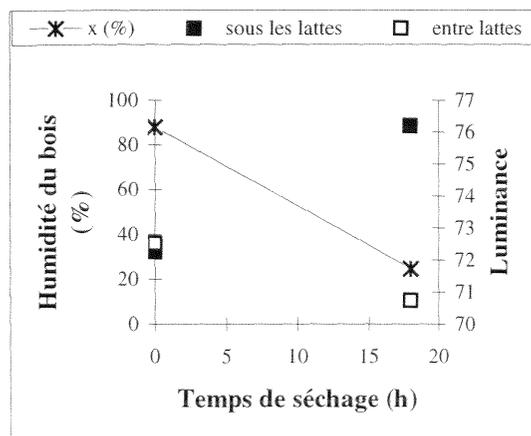


Figure b.14 : Cycle 26

Annexe b.7: Evolution de la luminance (série 5, cycle 27 à cycle 38)

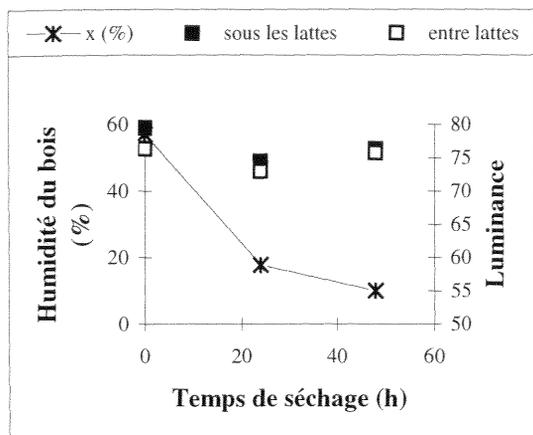


Figure b.15a : Cycle 27 (6h)

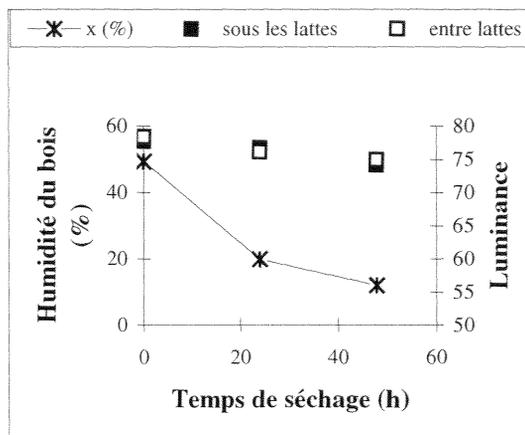


Figure b.15b : Cycle 27 témoin

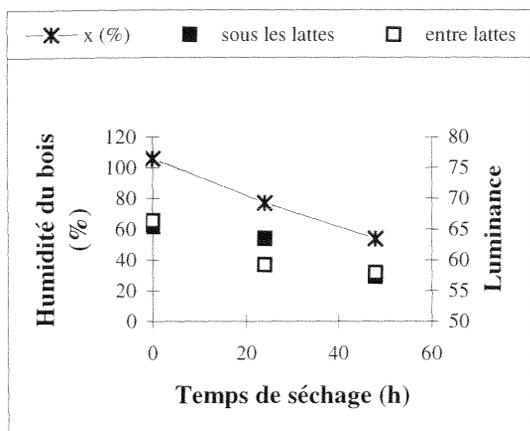


Figure b.16a : Cycle 28 (12h)

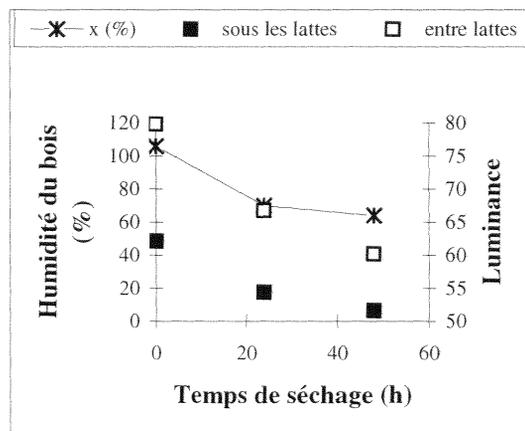


Figure b.16b : Cycle 28 (témoin)

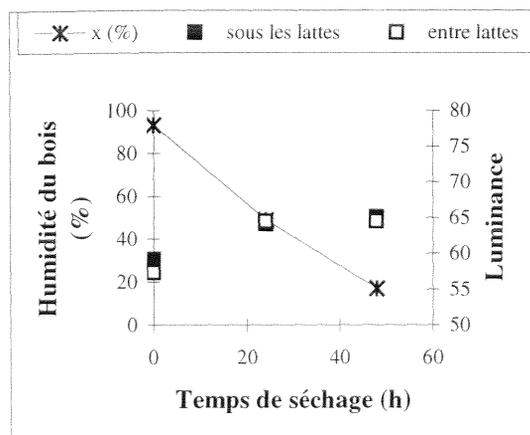


Figure b.17a : Cycle 29 (24h)

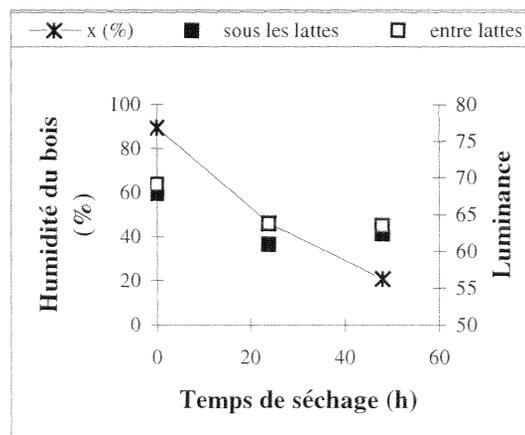


Figure b.17b : Cycle 29 (témoin)

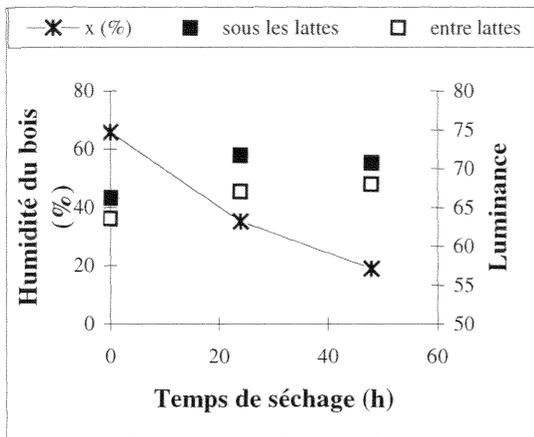


Figure b.18a : Cycle 30 (48h)

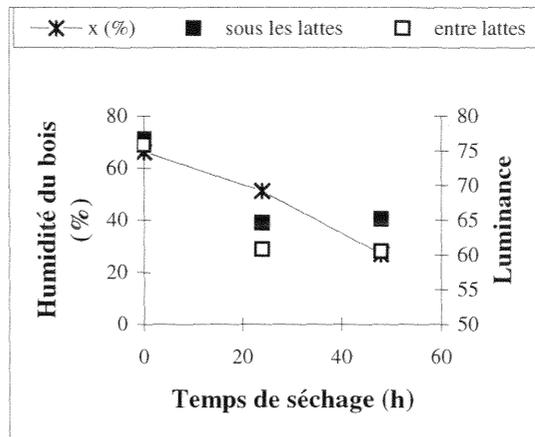


Figure b.18b : Cycle 30 (témoin)

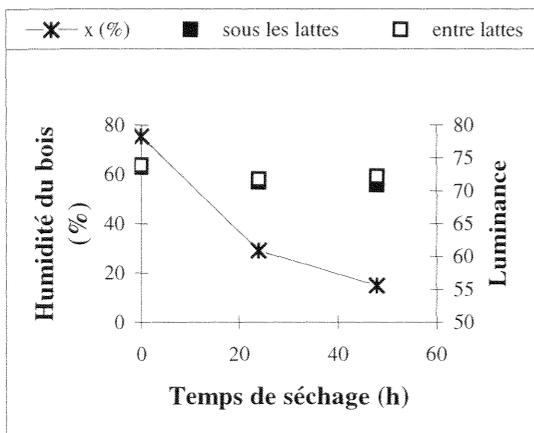


Figure b.19a : Cycle 31 (6h-r)

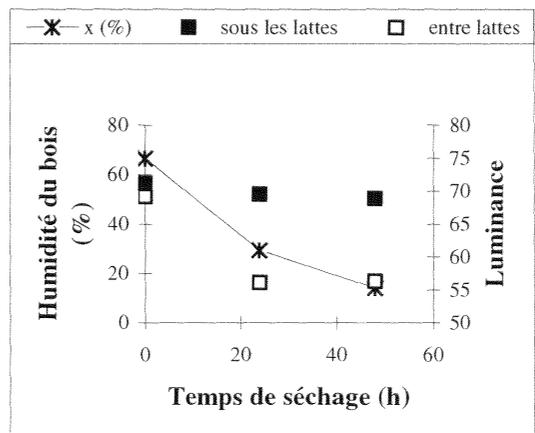


Figure b.19b : Cycle 31 (témoin-r)

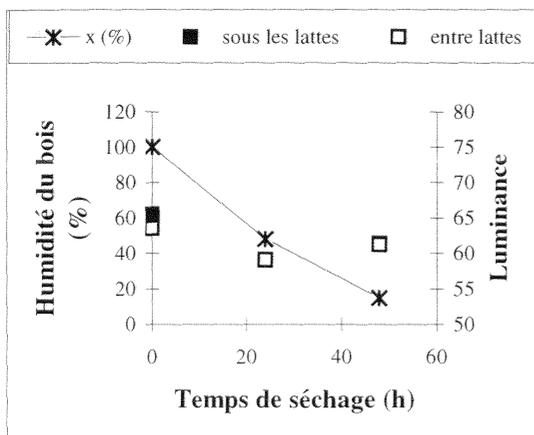


Figure b.20a : Cycle 32 (12h-r)

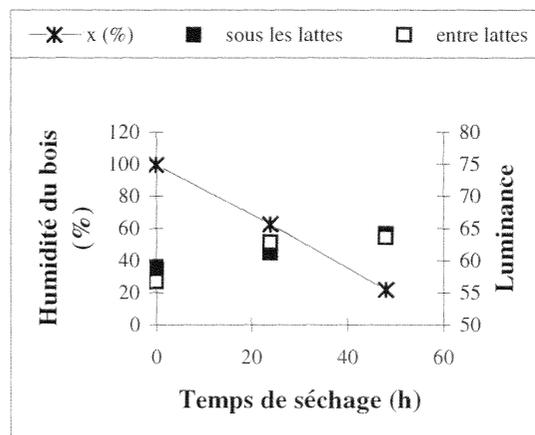


Figure b.20b : Cycle 32 (témoin-r)

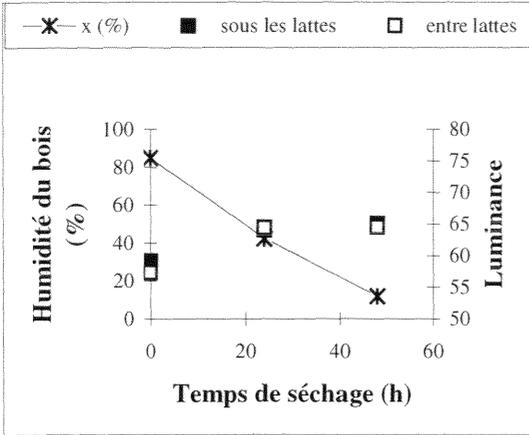


Figure b.21a : Cycle 33 (24h-r)

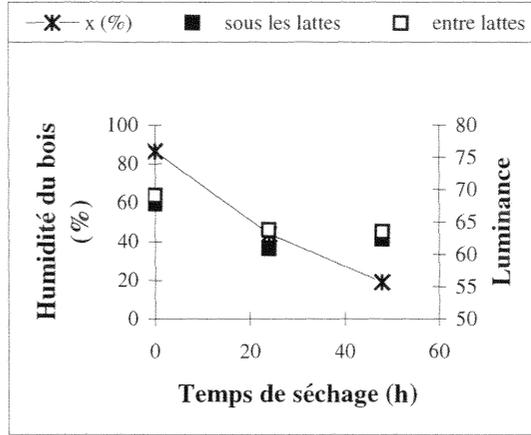


Figure b.21b : Cycle 33 (témoin-r)

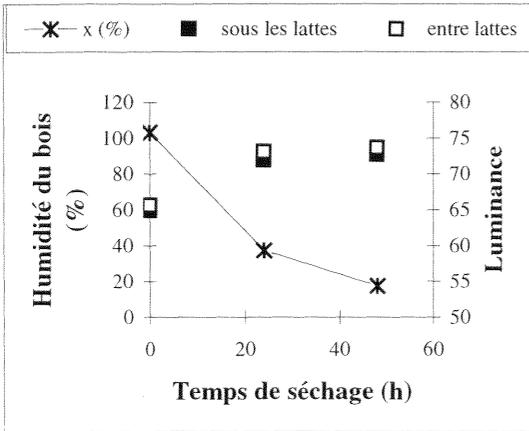


Figure b.22a : Cycle 34 (48h-r)

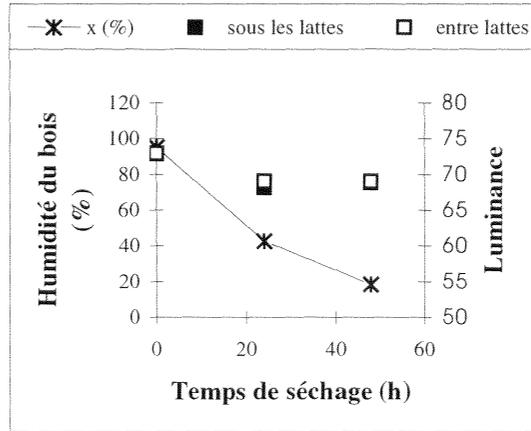


Figure b.22b : Cycle 34 (témoin-r)

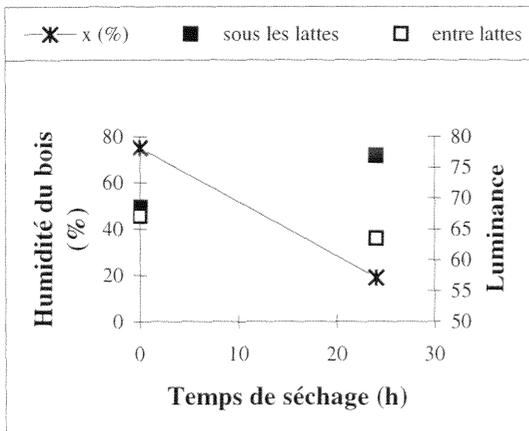


Figure b.23a : Cycle 35 (6h)

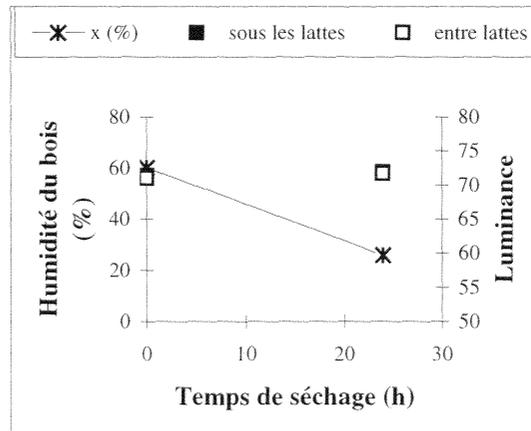


Figure b.23b : Cycle 35 (témoin)

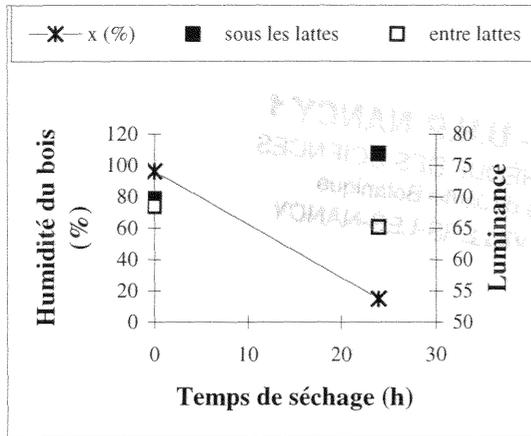


Figure b.24a : Cycle 36 (12h)

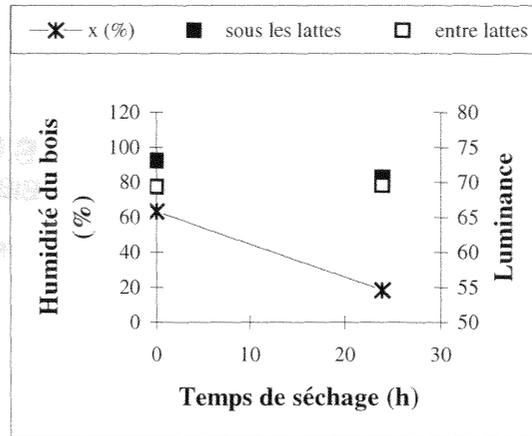


Figure b.24b : Cycle 36 (témoin)

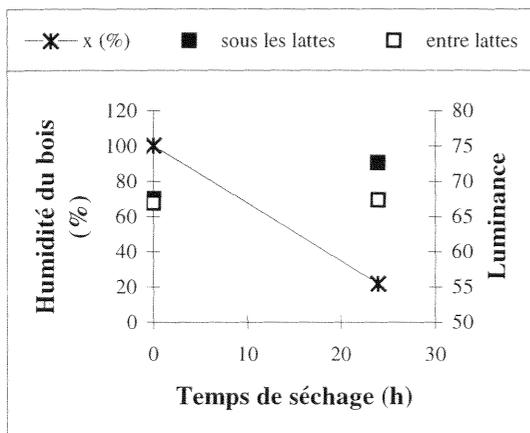


Figure b.25a : Cycle 37 (24h)

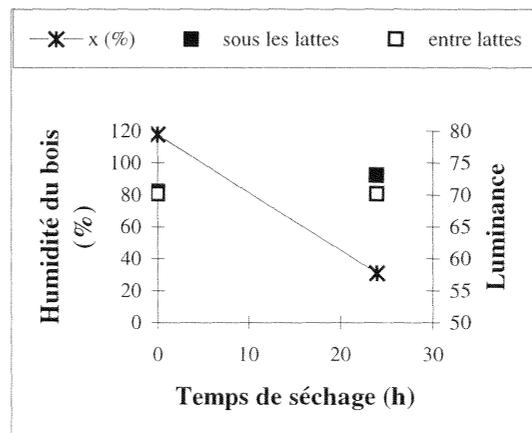


Figure b.25b : Cycle 37 (témoin)

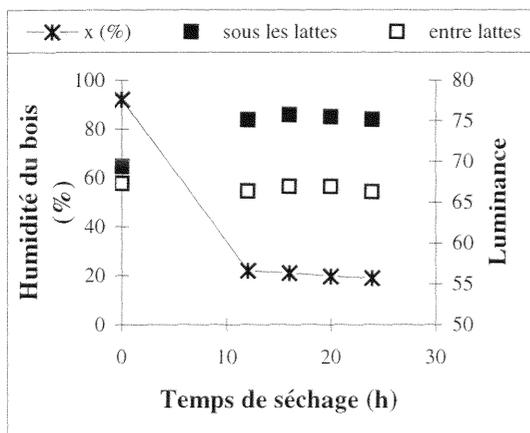


Figure b.26a : Cycle 38 (48h)

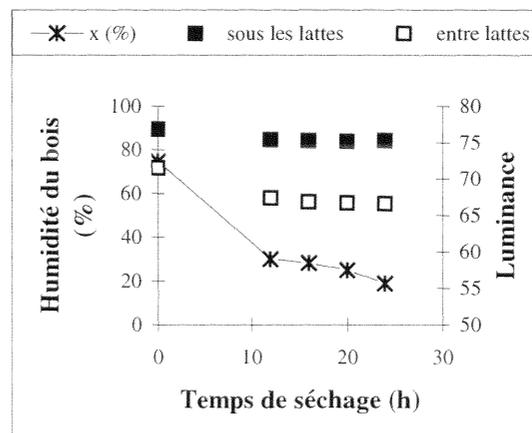


Figure b.26b : Cycle 38 (témoin)

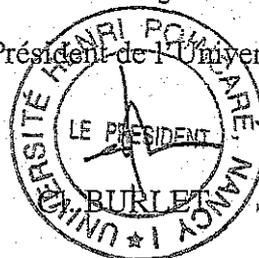
Monsieur Ruben A. ANANIAS

DOCTORAT de l'UNIVERSITE HENRI POINCARÉ, NANCY-1
en SCIENCES et TECHNOLOGIES INDUSTRIELLES

VU, APPROUVE ET PERMIS D'IMPRIMER

Nancy, le 23 janvier 2001 n° 490

Le Président de l'Université



3C-F9

RESUME

Dans le cadre de l'optimisation du séchage du hêtre dans un séchoir convectif basse température, nous avons, dans une première partie, montré que la vitesse de séchage pouvait être exprimée de manière phénoménologique en fonction d'une force motrice égale à la différence entre l'humidité moyenne du bois et l'humidité du bois en équilibre avec l'air humide extérieur. Le coefficient de transfert global dépend de l'épaisseur des avivés, de la vitesse de l'humidité relative et de la température de l'air circulant au sein de la pile. L'expression proposée représente mieux la vitesse de séchage que le modèle proposé par Van Meel.

La deuxième partie examine la discoloration du bois de hêtre qui apparaît lors d'un séchage convectif. La discoloration est due à une oxydation des tanins condensés. Elle est favorisée par le maintien d'une température et d'une humidité du bois élevées. Le séchage par une phase gazeuse inerte et l'extraction des tanins avant séchage permettent de réduire, voir de limiter la discoloration. Dans la mesure où les conditions opératoires de séchage, optimales sur le plan mécanique, sont défavorables pour le phénomène de discoloration, la solution de ce phénomène ne peut être obtenue qu'en évitant la réaction d'oxydation par l'élimination de l'oxygène, soit en phase gazeuse, soit dans la phase aqueuse interne au bois à sécher.

MODELLING OF CONVECTIVE WOOD DRYING AT LOW TEMPERATURE AND OPTIMISATION PROCESSES OF KILN DRYING DISCOLORATION OF BEECH

ABSTRACT

The aim of this study is to optimise kiln drying of beech at low temperature. Our first purpose is to justify that the drying rate could be represented by a phenomenological model defining a driving force expressed as the difference between the average wood moisture content and the equilibrium wood moisture content. The results show that the mathematical relation proposed is valid by introducing a global mass transfer coefficient, noted K, and characterised by four operating parameters : wood thickness, air velocity, air temperature and air relative humidity. The proposed expression represents better the drying rate than the Van Meel model.

We also attempt to examine the phenomenon of discoloration that can be observed during beech drying. The condensed tannins are the main precursors of this discoloration process. This kiln drying discoloration is intensified when the air temperature and the relative humidity are increased. Kiln drying in an inert atmosphere and the extraction of condensed tannins before drying limit beech discoloration. As far as the optimal operating drying conditions are unfavourable, the solution of this problem can only be reached by avoiding the oxidation reactions. The method suggested is to eliminate oxygen either in the gas phase or in the internal aqueous phase of wood.

Mots clés : séchage, hêtre, *Fagus sylvatica*, vitesse de séchage, modélisation, discoloration, oxydation, tanins condensés

Discipline : Sciences du Bois

MODELISATION DU SECHAGE CONVECTIF BASSE TEMPERATURE ET OPTIMISATION DU SECHAGE DU HETRE VIS A VIS DES PROBLEMES DE DISCOLORATION

UNIVERSITE HENRI POINCARÉ NANCY I

Ecole Nationale Supérieure des Technologies et Industries du Bois (ENSTIB)

Laboratoire d'Études et de Recherches sur le Matériau Bois (LERMAB)