

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

THÈSE PRÉSENTÉE À
L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

COMME EXIGENCE PARTIELLE
DU DOCTORAT EN GÉNIE PAPETIER

PAR
XINGFEN JIANG

ÉTUDE DU MÉCANISME D'IMPRÉGNATION CHIMIQUE DU BOIS

MAI 2005

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

REMERCIEMENTS

La réalisation de ce projet a impliqué la participation de plusieurs personnes à qui je voudrais démontrer ma plus sincère reconnaissance.

Premièrement, je voudrai remercier mon directeur de recherche, le professeur Robert Lanouette pour son support primordial sur le plan de la recherche.

Je voudrais également remercier mon codirecteur, le Dr Kwei-Nam Law, pour son aide et son constant support pendant mes études.

D'autre part, ce travail n'aurait pu être complété sans la collaboration de diverses personnes que je désire remercier grandement : Alain Marchand, Pierre Gendron et Jean-Pierre Aubin pour leur assistance au laboratoire; Agnès Lejeune, pour sa technique de SPX et MEB, QuianQing Zha, pour sa participation au laboratoire.

Je veux aussi remercier les professionnels et les étudiants au CIPP pour leur assistance et leur collaboration pendant mon séjour à l'UQTR.

Finalement, j'aimerais également remercier mon époux, Ning Zhou et mon fils, Guangyan, pour leur compréhension et leur appui constant durant mes études.

RÉSUMÉ

L'augmentation de la pénétrabilité du bois avant l'imprégnation chimique et le raffinage est essentielle et critique dans les mises en pâte chimicomécanique et mécanique dans le but d'atteindre une distribution de produits chimiques la plus uniforme possible dans un court temps d'imprégnation. La compression radiale est un concept de traitement mécanique qui a comme avantage de causer beaucoup moins de dommages aux fibres que la presse à vis. Ce travail de recherche vise à évaluer les effets de la compression radiale sur le changement des caractéristiques physiques de bois, les effets des variables principales (taux de compression radiale, puissance de dégazage, temps de dégazage, température, temps d'imprégnation) sur l'absorption de liquides et l'absorption d'hydroxyde de sodium pendant le procédé d'imprégnation et à modéliser le procédé d'imprégnation. De plus, il vise une meilleure compréhension des mécanismes de pénétration et de diffusion sur l'absorption de liquide et de produits chimiques.

Par l'immersion de spécimens dans l'eau sur une balance, nous avons démontré que la densité du spécimen comprimé varie de façon polynomiale en fonction du taux de compression radiale. Lorsque le taux de compression est faible, tel que 34%, la densité augmente un peu, mais ensuite diminue de plus en plus vite. La microscopie électronique à balayage (MEB) démontre qu'à un taux de compression de 34%, la déformation prend place principalement sur les lumens des trachéides du bois de printemps, donc c'est une densification du bois. La création de fissures est très faible, presque non visible au moyen de la MEB. Lorsque l'on applique un taux de compression de 68%, on voit non seulement la déformation mais également la création des macro et micro-fissures entre les fibres voisines dans la paroi S1. Avec un taux de compression de 85%, la création des fissures est plus efficace. Les fissures se produisent plus facilement suivant les rayons ligneux et les régions autour des canaux résinifères.

Le séchage peut réduire la pénétrabilité du bois de pin gris à cause de l'aspiration des membranes des ponctuations aréolées. Ceci est plus important lorsque la compression radiale

est faible, par exemple de 34%. La proportion des ponctuations aspirées varie avec les conditions de séchage telle que la température; elle accroît avec l'augmentation de la vitesse de séchage (augmentation de la température).

Les résultats expérimentaux démontrent que l'absorption de liquide augmente de plus en plus en fonction du taux de compression radiale. Cette dernière augmente non seulement la création de fissures servant de passages à la pénétration de liquide, mais elle raccourcit aussi les réseaux de passage tout en réduisant la distance de pénétration. Le dégazage augmente de façon efficace la vitesse de pénétration initiale; son effet est de plus en plus grand avec l'augmentation de la puissance de dégazage. D'autre part, la haute température d'imprégnation aide à expulser l'air des spécimens tout en augmentant le gradient de pression d'air, ce qui améliore l'absorption de liqueur. L'analyse de la distribution de Na dans le spécimen entier obtenue par la méthode de SPX démontre que l'absorption de produits chimiques et l'uniformité d'imprégnation croissent avec l'augmentation du taux de compression radiale. La compression diminue beaucoup le temps d'imprégnation.

On a utilisé un logiciel - Statistique *JMPIN* pour analyser et évaluer l'effet de la dimension des copeaux et comparer la compression radiale avec la compression au moyen d'une presse à vis relativement à l'absorption d'hydroxyde de sodium. La dimension des spécimens a des effets négatifs sur l'absorption de produits chimiques ; l'épaisseur des copeaux est plus critique que la longueur. La compression radiale peut diminuer l'effet négatif de la dimension des spécimens, donc augmenter l'absorption d'hydroxyde de sodium. Cependant, dans le cas où la compression est effectuée à l'aide d'une presse à vis, les effets de la dimension sont positifs.

En utilisant la routine *Solveur* dans l'Excel de Microsoft nous avons développé des modèles mathématiques pour caractériser l'absorption d'eau et l'absorption de liqueur de NaOH à 3%. La modélisation du processus d'imprégnation nous permet de mieux comprendre les phénomènes de pénétration et de diffusion ainsi que l'influence du séchage sur l'aspiration des membranes des ponctuations aréolées. L'absorption de liquide ou liqueur est contrôlée par le

mécanisme de pénétration tandis que l'absorption des produits chimiques est contrôlée par l'effet combiné de pénétration de la liqueur et de diffusion d'ions dans la liqueur.

En résumé, les connaissances acquises sur l'influence de la compression radiale du bois, sur les caractéristiques de pénétration et de diffusion de la liqueur et des produits chimiques dans la matrice du bois constituent la principale contribution scientifique de cette étude. Les modèles développés nous permettent de mieux optimiser le procédé d'imprégnation des copeaux dans la mise en pâte chimicomécanique, ce qui nous permet également de produire une pâte de meilleure qualité. Ces connaissances sont particulièrement importantes quant à l'utilisation des essences ayant des fibres à paroi épaisse telles que le pin gris et le mélèze. L'augmentation de la facilité d'utilisation de ces espèces est économiquement intéressante pour l'industrie canadienne des pâtes et papiers.

Mai 2005

Mots-clés : Compression radiale, Imprégnation, Pénétration, Diffusion, *Pinus banksiana* Lamb, Modélisation, Absorption chimique, Absorption de liquides.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	ii
RÉSUMÉ	iii
TABLE DES MATIÈRES.....	vi
LISTE DES TABLEAUX	x
LISTE DES FIGURES.....	xi
LISTE DES ÉQUATIONS.....	xvi
LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS	xvii
Chapitre 1 - INTRODUCTION.....	1
1.1 Problématique.....	1
1.2 Objectifs	1
Chapitre 2 - REVUE DE LITTÉRATURE	4
2.1 Caractéristiques des bois résineux.....	4
2.1.1 Propriétés physiques du bois	4
2.1.2 Microstructure du bois résineux et des trachéides.....	5
2.1.3 Ultrastructure et composition chimique du bois résineux.....	8
2.2 Le pin gris comme matière première.....	13
2.2.1 Caractéristiques du pin gris	14
2.2.2 Progrès sur la mise en pâte du pin gris	16
2.3 Comportement du bois lors du séchage.....	17
2.3.1 Effet du séchage lors de l'enlèvement de l'eau libre	17
2.3.2 Effet du séchage lors de l'enlèvement de l'eau liée.....	18
2.3.3 Effet du séchage en conditions spéciales.....	20
2.4 Traitements du bois avant raffinage.....	21
2.4.1 Pré-traitements mécaniques	22
2.4.2 Pré-traitements physiques	27
2.4.3 Imprégnation chimique et méthodes d'analyse	29
2.4.4 Effet de l'hydroxyde de sodium	40

Chapitre 3 - THÉORIES ET MÉCANISMES	43
3.1 Écoulement dans les bois résineux	43
3.2 Mécanisme de compression des copeaux	44
3.2.1 Compression dynamique	44
3.2.2 Compression statique (compression radiale)	44
3.3 Hystérésis et aspiration des ponctuations	46
3.3.1 Hystérésis	46
3.3.2 Aspiration des ponctuations	46
3.4 Mécanismes d'imprégnation des copeaux	49
3.4.1 Pénétration	49
3.4.2 Diffusion	51
3.4.3 Gonflement	52
Chapitre 4 - EXPÉRIMENTATION	54
4.1 Expérimentation sur l'imprégnation	54
4.1.1 Préparation des spécimens	54
4.1.2 Compression	55
4.1.3 Processus d'imprégnation	57
4.1.4 Méthodes d'analyse	64
4.2 Schéma des travaux	68
Chapitre 5 - RÉSULTATS ET DISCUSSION – PARTIE I : EFFET D'UNE COMPRESSION RADIALE	70
5.1 Effet sur le changement de dimension	70
5.2 Effet sur la teneur en eau	73
5.3 Effet sur la densité du bloc	75
5.4 Effet sur le changement de la microstructure	77
5.4.1 Compression à 34%	82
5.4.2 Compression à 68%	86
5.4.3 Compression à 85%	95
5.5 Effet sur la teneur en eau maximale	106
5.6 Conclusion	108
Chapitre 6 - RÉSULTATS ET DISCUSSION – PARTIE II : IMPRÉGNATION D'EAU	111
6.1 Variables réponses	111

6.2	Optimisation du temps de dégazage	113
6.2.1	Effet de la compression et du temps de dégazage.....	113
6.2.2	Effet d'une basse compression (34%) sur l'absorption d'eau.....	118
6.2.3	Effet du procédé de séchage	121
6.2.4	Effet de combinaison entre compression et séchage.....	122
6.2.5	Effet de la température de séchage	124
6.3	Optimisation du procédé d'imprégnation d'eau	125
6.3.1	Effet de la compression radiale sur l'absorption d'eau	125
6.3.2	Effet du gradient de pression (sous vide)	128
6.3.3	Effet du temps.....	133
6.4	Conclusions	140
Chapitre 7 - RÉSULTATS ET DISCUSSIONS – PARTIE III :		
	IMPRÉGNATION DANS NaOH à 3%.....	142
7.1	Absorption de la liqueur chimique	142
7.1.1	Effet de la compression radiale	142
7.1.2	Effet d'un dégazage fort.....	147
7.1.3	Effet de la température	148
7.1.4	Effet du temps.....	152
7.1.5	Optimisation du procédé de pénétration de la liqueur	155
7.2	Effets des diverses variables sur l'absorption de NaOH.....	156
7.2.1	Effets de la compression radiale et du gradient de pression	156
7.2.2	Effet de la température	163
7.2.3	Effet du temps.....	163
7.3	Effet de la grosseur des blocs et d'un traitement mécanique	165
7.3.1	Discussion sur les effets	165
7.3.2	Optimisation du procédé d'imprégnation	169
7.4	Distribution du sodium	172
7.4.1	Analyse par méthode qualitative.....	172
7.4.2	Analyse par méthode quantitative	176
7.5	Comparaison des méthodes d'imprégnation	183
7.6	Conclusions	184
Chapitre 8 - RÉSULTATS ET DISCUSSION- PARTIE IV : MODÉLISATION.....		188
8.1	Développement du modèle dans excel	188

8.1.1	Forme des modèles	188
8.1.2	Détermination des paramètres des équations	194
8.1.3	Ajustement des paramètres du modèle	197
8.1.4	Simulation et évaluation des modèles	205
8.2	Modèle d'absorption du NaOH basé sur la dimension des blocs.....	210
8.2.1	Modèle de régression.....	210
8.2.2	Évaluation	212
8.3	Conclusion.....	212
	Chapitre 9 - CONCLUSIONS GÉNÉRALES.....	214
	BIBLIOGRAPHIE	219
	Annexe I. Conditions du dégazage et résultats des essais	233
	Annexe II. Variables, plan d'expérience et résultats de teneur en eau (densité moyenne de 0,43 g/cm ³).....	234
	Annexe III. Conditions expérimentales et réponses sur l'absorption de la liqueur.....	235
	Annexe IV. Conditions d'imprégnation et réponses (absorption de produit chimique).....	236
	Annexe V. Tableau matrice d'expérience et résultats expérimentaux.....	237

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2-1	Épaisseur de paroi et orientation des microfibrilles.....	9
Tableau 2-2	Caractéristiques physiques générales du pin gris et de l'épinette.....	14
Tableau 2-3	Caractéristiques physiques des fibres de pin gris et d'épinette.....	15
Tableau 2-4	Caractéristiques chimiques du pin gris et de l'épinette noire	16
Tableau 2-5	Comparaison entre la pénétration et la diffusion	32
Tableau 2-6	Méthodes pour mesurer la perméabilité de bois	34
Tableau 2-7	Méthodes utilisées pour étudier la diffusion de produits chimiques.....	35
Tableau 2-8	Méthodes utilisées pour analyser la distribution de produits chimiques	37
Tableau 4-1	Dimension des neuf grosses de spécimen.....	55
Tableau 4-2	Spécimens utilisés pour les essais de dégazage et d'imprégnation d'eau.....	58
Tableau 4-3	Spécimens utilisés dans l'imprégnation de NaOH à 3%.....	59
Tableau 4-4	Conditions de dégazage de l'imprégnation d'eau	60
Tableau 4-5	Variables et leurs niveaux pour les essais d'imprégnation d'eau	60
Tableau 4-6	Variables et leurs niveaux pour les essais d'imprégnation de NaOH à 3%.....	61
Tableau 4-7	Conditions d'imprégnation des spécimens avec différentes dimensions dans NaOH à 3%.....	61
Tableau 4-8	Réponses dépendantes étudiées - caractéristiques physiques	64
Tableau 4-9	Spécimens utilisés pour MEB	65
Tableau 5-1	Changements de dimension et propriétés physiques du bois.....	70
Tableau 5-2	Effet de la compression sur l'absorption maximale d'eau et le gonflement en épaisseur	107
Tableau 6-1	Relation entre la pression capillaire et le rayon capillaire d'après la loi de Jurins	116
Tableau 6-2	Volume de vide résiduel après l'imprégnation	138
Tableau 7-1	Échantillons utilisés dans l'étude SPX et leurs conditions d'imprégnation	173
Tableau 7-2	Comparaison des deux procédés d'imprégnation	184
Tableau 8-1	Évaluation des équations de prédiction.....	200
Tableau 8-2	Développement du modèle pour l'absorption de la liqueur	202
Tableau 8-3	Développement du modèle pour l'absorption de NaOH	204
Tableau 8-4	Coefficients estimés obtenus à partir des résultats à l'annexe V	211

LISTE DES FIGURES

Figure 2-1	Caractéristiques macroscopiques du bois sur les trois coupes (radiale, tangentielle et transversale) d'un tronc de bois [7]	4
Figure 2-2	Microstructure de bois résineux en vue tridimensionnelle [7].....	6
Figure 2-3	(a, b) Trachéide de bois résineux [9], (c) Schéma d'organisation de ponctuations aréolées et (d) Micrographie électronique de la surface d'une membrane de ponctuations de <i>Cryptomeria Japonica</i> [10].....	7
Figure 2-4	Schéma de l'organisation de la paroi d'une trachéide [11].....	9
Figure 2-5	Représentation de l'organisation des parois cellulaires illustrant les diverses textures microfibrillaires [7]	10
Figure 2-6	Structure microscopique et sub-microscopique de la cellulose [7].....	11
Figure 2-7	Distribution des constituants chimiques principaux dans les parois cellulaires [13]	12
Figure 2-8	Localisation et constituants principaux des extractibles du bois [14].....	13
Figure 2-9	Ponctuation aréolée aspirée (a) en face et (b) une coupe transversale des parois [9]	18
Figure 2-10	Teneur d'humidité d'équilibre du bois en fonction de la pression relative de vapeur - courbes d'adsorption isotherme et de désorption isotherme de bois []	20
Figure 2-11	Courbes de l'effort nominal avec l'augmentation de la déformation pour un cycle de compression radiale pour le bois humide de <i>sugi</i> à 100°C [10]	25
Figure 2-12	Effet du pH sur la surface capillaire efficace du tremble [107]	36
Figure 3-1	Modèle d'écoulement de liquide dans le bois résineux. d (diamètre de fibre), Lt (longueur de fibre), α (proportion d'une extrémité par rapport à la longueur de fibre) [136]	43
Figure 3-2	Courbes de force d'effort en fonction du déplacement (taux de déformation) lors de la compression [57]	45
Figure 3-3	Mécanisme d'aspiration des ponctuations aréolées dû à la tension capillaire [140]	48
Figure 3-4	(a) Ion sodium hydraté [144]; (b) Degré de gonflement de la cellulose en fonction de la concentration de NaOH [133].....	53
Figure 4-1	Préparation de spécimens (blocs) à partir de rondelles de pin gris.....	55
Figure 4-2	(a) Compression radiale et (b) une presse hydraulique «DAKE».....	56
Figure 4-3	Système utilisé pour l'imprégnation	62
Figure 4-4	Réservoir et piston utilisés pour l'étude de la compression statique dans la liqueur chimique	63
Figure 4-5	Spectre dispersif de rayon X d'énergie 1s du sodium.	67
Figure 4-6	Programme de recherche suivi dans cette thèse.....	69

Figure 5-1	Spécimens témoins et comprimés : (A), (B), (C) et (D) respectivement pour 0, 34, 68 et 85% de compression radiale	70
Figure 5-2	Épaisseur et largeur mesurées immédiatement après la compression radiale et avant l'imprégnation.....	73
Figure 5-3	Teneur en eau du spécimen comprimé.....	74
Figure 5-4	Influence de la densité sur la teneur en eau après la compression.....	75
Figure 5-5	Effet de la compression sur la densité du bloc.....	76
Figure 5-6	Influence de la densité des blocs sur la variation de densité après une compression à 85%	77
Figure 5-7	Micrographies des coupes transversales de l'échantillon témoin (BE : Bois d'été, BP : Bois de printemps)	79
Figure 5-8	Micrographies des coupes radiales de l'échantillon témoin (BE : Bois d'été, BP : Bois de printemps)	80
Figure 5-9	Micrographies des coupes tangentielles de l'échantillon témoin (PP : Paires de ponctuations; RL : Rayon ligneux; CR : Canal résinifère)	81
Figure 5-10	Micrographies d'une coupe transversale de spécimen comprimé à 34% (CR: Canal résinifère RL: Rayon ligneux; DF: Déformation des fibres)	83
Figure 5-11	Micrographies d'une coupe radiale d'un spécimen comprimé à 34% (CR: Canal résinifère; TR: Trace de rayon; LMC: Lamelle mitoyenne composée; S ₁ : Couche externe de la paroi secondaire).....	85
Figure 5-12	Micrographies d'une coupe tangentielle de spécimen comprimé à 34% (RL: Rayon ligneux; S ₁ et S ₂ : Couches de la paroi secondaire)	87
Figure 5-13	Micrographies d'une coupe transversale de spécimen comprimé à 68%	88
Figure 5-14	Micrographies d'une coupe radiale de spécimen comprimé à 68%	90
Figure 5-15	Micrographies d'une coupe radiale de spécimen comprimé à 68% (a) bois de printemps et (b) bois d'été.....	91
Figure 5-16	Micrographies de séparation des fibres en coupe tangentielle d'un spécimen comprimé à 68%	93
Figure 5-17	Micrographies démontant la séparation des fibres en coupe tangentielle d'un spécimen comprimé à 68%, à plus fort grossissement	94
Figure 5-18	Micrographies illustrant une coupe transversale de spécimen comprimé à 85% (S : Séparation)	96
Figure 5-19	Micrographies montrant la coupe radiale du spécimen comprimé à 85% (à faible grossissement).....	98
Figure 5-20	Surfaces radiales séparées pendant un cycle de compression/ décompression de 85% dans le bois de printemps	99
Figure 5-21	Micrographies illustrant les surfaces radiales séparées dans le bois d'été du spécimen comprimé à 85%	101
Figure 5-22	Surfaces radiales coupées des spécimens comprimés à 85%.....	102

Figure 5-23	Micrographies démontrant une coupe tangentielle du spécimen comprimé à 85%, à faible grossissement	103
Figure 5-24	Micrographies d'une coupe tangentielle de spécimen comprimé à 85% à fort grossissement	105
Figure 5-25	Effet de la compression radiale sur l'absorption maximale d'eau et l'augmentation d'eau après compression	107
Figure 5-26	Gonflement en épaisseur des blocs après l'imprégnation d'eau en fonction du degré de déformation	108
Figure 6-1	Teneur en eau en fonction du temps de dégazage sous vide (620 mm Hg) durant 5 minutes d'imprégnation : (a) 34%; (b) 68% et (c) 85% de compression et sans ajustement d'humidité.....	114
Figure 6-2	Absorption d'eau en fonction du temps de dégazage sous vide (610mm Hg) à 5 min d'imprégnation : a) les témoins séchés à 22°C; b) et c) les spécimens comprimés à 34% et séchés à 22°C et 50 °C, respectivement.....	119
Figure 6-3	Déplacement proposé des membranes de ponctuations aréolées suivant a-c-d-e-f-g pendant un cycle de compression/décompression radiale	123
Figure 6-4	Teneur en eau en fonction du taux de compression sous différents gradients de pression, a) 620 mm Hg, b) 410 mm Hg et c) 200 mm Hg	127
Figure 6-5	Effet de la compression radiale sur l'absorption d'eau à 1 minute en comparant avec les échantillons témoins saturés	128
Figure 6-6	Effet du gradient de pression sur la teneur en eau : (a) 1 min, (b) 2 min, (c) 5 min, et (d) 10 min	129
Figure 6-7	Effet du gradient de pression sur l'absorption d'eau en 1 min	130
Figure 6-8	Effet du temps d'imprégnation sur la teneur en eau (densité moyenne : 0,43 g/cm ³)	134
Figure 6-9	Réseaux de passages avant [9] et après une compression relativement élevée	137
Figure 6-10	Effet de la compression sur la création des fissures et l'amélioration des réseaux de passage de pénétration	138
Figure 7-1	Effet de la compression radiale sur l'absorption de liqueur chimique (NaOH à 3%)	143
Figure 7-2	Effet du dégazage (sous un gradient de pression de 610 mm Hg avant l'imprégnation) sur le degré de pénétration de liqueur chimique	147
Figure 7-3	Effet de la température sur l'absorption de la liqueur chimique.....	150
Figure 7-4	Effet du temps d'imprégnation sur l'absorption de NaOH à 3%.....	153
Figure 7-5	Effet de la compression radiale sur l'absorption d'hydroxyde sodium	157
Figure 7-6	Concentrations de liqueur absorbée en fonction du taux de compression radiale.....	159
Figure 7-7	Effet du dégazage des spécimens avant l'imprégnation sur l'absorption du NaOH	161

Figure 7-8	Effet de la température sur l'absorption du NaOH	162
Figure 7-9	Effet du temps d'imprégnation sur l'absorption de NaOH	164
Figure 7-10	Profils de prédition: (a) compression radiale et (b) presse à vis Variables codées : Xe – épaisseur, XI –longueur, Xt – temps d'imprégnation, Xc – taux de compression, C – compression radiale, PV –presse à vis.	166
Figure 7-11	Surface de réponse pour l'absorption du NaOH (Xe et XI – Épaisseur et longueur du bloc en valeurs codées, Taux de compression = 34%, Compression radiale, Temps = 62,5 min)	169
Figure 7-12	Surface de réponse pour l'absorption de NaOH (Xe et Xc – Épaisseur du bloc et taux de compression en valeurs codées, Longueur = 25 mm, Temps = 62,5 min, compression radiale)	170
Figure 7-13	Surface de réponse pour l'absorption de NaOH (Xe et Xt – Épaisseur du bloc et temps en valeurs codées, Longueur = 25 mm, Taux de compression = 68%, compression radiale)	171
Figure 7-14	Surface de réponse pour l'absorption de NaOH (Xc et Xt – Taux de compression et temps en valeurs codées, Épaisseur = 4 mm (-1.414), Longueur = 25 mm, compression radiale)	172
Figure 7-15	Distribution du sodium dans la direction tangentielle dans les spécimens imprégnés A, B, C, D et E illustrés au tableau 7-1	173
Figure 7-16	Profils de concentration longitudinale de Na après imprégnation des spécimens de pin gris avec une liqueur de NaOH à 3%	177
Figure 7-17	Profils de concentration radiale après imprégnation de spécimens de pin gris : (a) 0% (b) 34%, et (c) 68% de compression	180
Figure 7-18	Profils de concentration tangentielle après imprégnation de spécimens de pin gris avec une liqueur de NaOH à 3%	182
Figure 8-1	Exemple de détermination du type de modèle pour l'absorption d'eau	189
Figure 8-2	Détermination du type de modèle pour l'absorption de NaOH à 3%	191
Figure 8-3	Détermination du type de modèle pour l'absorption totale de NaOH	192
Figure 8-4	Détermination du type de modèle pour l'absorption NaOH par diffusion	193
Figure 8-5	Détermination des bonnes fonctions pour la teneur en eau et la compression radiale	195
Figure 8-6	Détermination des bonnes fonctions pour la teneur en eau et le gradient de dégazage	196
Figure 8-7	Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption de liqueur et la compression radiale	196
Figure 8-8	Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption de la liqueur et la température pour le cas sous 610 mm Hg	196
Figure 8-9	Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption de NaOH par diffusion et la température	198
Figure 8-10	Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption d'hydroxyde de sodium par diffusion et la compression radiale	199

Figure 8-11	Simulation de l'absorption d'eau par le modèle développé présenté dans l'équation 8-1	206
Figure 8-12	Simulation de l'absorption de liqueur chimique –NaOH à 3% par le modèle développé présenté dans l'équation 8-2	207
Figure 8-13	Simulation de l'absorption de NaOH par le modèle développé présenté dans l'équation 8-3	208
Figure 8-14	(a) Graphique entre les valeurs prédites et expérimentales et (b) distribution des erreurs résiduelles pour l'absorption d'eau	209
Figure 8-15	(a) Graphique entre les valeurs prédites et expérimentales et (b) distribution des erreurs résiduelles pour l'absorption de liqueur de NaOH à 3%	209
Figure 8-16	(a) Relation entre les valeurs prédites et expérimentales et (b) distribution des erreurs résiduelles pour l'absorption de NaOH	209
Figure 8-17	(a) Valeurs mesurées en fonction des valeurs prédites et (b) Erreurs résiduelles en fonction des valeurs prédites pour le modèle d'absorption d'hydroxyde de sodium.....	212

LISTE DES ÉQUATIONS

Q	$= (\pi Gp g_c r^4) / (8 L \eta)$	Équation 3-1.....	49
P_c	$= 2\sigma \cos\theta / r$	Équation 3-2.....	50
ΔP	$= (P_{ex} + P_h + P_c) - (P_a + P_v)$	Équation 3-3.....	50
dm/dt	$= -DA (dc/dx)$	Équation 3-4.....	51
Dc/dt	$= D(d^2c/dx^2)$	Équation 3-5.....	51
D	$= A_f T_K^{1/2} e^{(-E/RT_K)} \text{ ou } D = D_0 x e^{-E/(RT_K)}$	Équation 3-6.....	51
P/B	$= (\text{intensité d'échantillon} - \text{Intensité du fond}) / \text{Intensité du fond}$		
$Con_{location} / Con_{surface}$	$= (P/B_{location}) / (P/B_{surface})$	Équation 4-1.....	67
$Tee = Tee_o + (0,29 \times e^{(-2,50+4,78 \times Com)} + 0,29 \times e^{(-4,84+6,40 \times Gp/760)}$ $- 0,00009 \times e^{(-3,78+15,56 \times Com \times Gp/760)} - 0,01)$ $\times t^{0,019 \times (1+9,120 \times Gp/760) - 0,87 \times Com - 8,71 \times Com \times Gp/760 - 2,50 \times (Gp/760)^2 - 0,30 \times Com^2}$	Équation 4-2.....	67	
		Équation 8-1.....	201
$AL = 0,044 \times T^{(0,279 \times (1-0,439 \times Com))}$ $\times (1 - 0,963 \times Com + 6,800 \times Com^2 + 7,738 \times Com \times Gp + 3,360 \times Gp)$ $\times t^{(0,021 \times (1-0,066 \times T + 0,0004 \times T^2 + 12,671 - 2,481 \times Com - 4,967 \times Com^2 - 7,670 \times Gp + 1,370 \times Gp \times Com)}$	Équation 8-2.....	202	
$AC_t = AC_{pp} + AC_{dp} = AC_{pp} + 1,34 \times (273 + T)^{1/2} \times e^{(-4,15/(273+T))}$ $\times (1 - 0,86 \times e^{(-0,23 \times Com)} - 0,01 \times Gp + 0,03 \times Com \times Gp)$ $\times t^{(0,23 \times (1+0,02T - 0,0001T^2 - 0,86Com + 0,43Com^2 + 0,03Gp + 0,01Com \times Gp)}$	Équation 8-3.....	203	
$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^3 \beta_i X_i + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 \beta_{ij} X_i X_j$	Équation 8-4.....	210	
$Y(AC) = 22,79 - 3,67X_e - 3,51X_l + 2,88X_c + 15,38X_t + 0,8471X_e(X_c + 0,286)$ $+ 0,25X_l(X_c + 0,29) + X_l(X_t - 1,61) + X_e(X_t - 1,93) + 1,04X_t(X_c + 0,29)$ $+ 1,41X_e^2 + 1,16X_l^2 + 3,44(X_c + 0,29)^2$	Équation 8-5.....	211	

LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS

σ	= Tension de surface du liquide
	= Spectroscopie de dispersion d'énergie de rayon X
η	= Viscosité du fluide
θ_a	= Angle de contact
A	= Surface de diffusion
\AA angström	= $10^{-10} \text{ m} = 10^{-7} \text{ mm} = 10^{-4} \mu\text{m} = 10^{-1} \text{ nm}$
AC _d	= Absorption chimique diffusée (mgNaOH/gBois)
AC _p	= Absorption chimique pénétrée (mgNaOH/gBois)
AC _t	= Absorption chimique (produit chimique) totale (mgNaOH/gBois)
A _e	= Absorption d'eau
A _f	= Facteur de fréquence
AL	= Absorption de la liqueur (gLiqueur/gBois)
ANOVA	= Analyse de la variance
AV	= Ajustement visuel
CIPP	= Centre Intégré en pâtes et papiers
Com	= Compression radiale (%)
d	= Diamètre
D	= Constante de diffusion des gaz
D _b	= Densité des blocs secs absolus
dc/dx	= Rapport du changement de concentration sur la distance
dm/dt	= Taux de changement de transfert de masse
DP	= Degré de pénétration
DP _o	= Degré de pénétration initiale
DP _p	= Degré de pénétration pénétrée
DP _t	= Degré de pénétration totale (= Degré de pénétration=DP)
D _s	= Densité de solide (composant chimique)
Ea	= Énergie d'activation
E _R	= Épaisseur radiale
g _c	= Constante de proportionnalité
Gp	= Gradient de pression (mm Hg)
I	= Intensité de rayon – X au spécimen interne
I ₀	= Intensité de rayon – X au bord de spécimen
Lc	= Longueur de la section de capillaire observée
L _L	= Longueur longitudinale
LM	= Lamelle mitoyenne
LMC	= Lamelle mitoyenne composée (LM+P)
L _T	= Largeur tangentielle des blocs
MEB	= Microscopie électronique à balayage
MEB/SDE	= Microscopie électronique à balayage en combinaison avec spectrométrie de rayon X à sélection en énergie
MET/SDE	= Microscopie électronique à transmission en combinaison avec spectrométrie de rayon X à sélection en énergie
mm Hg	= Millimètre Mercure
MPa	= Méga-Pascale
MPPA	= Mise en pâte mécanique au peroxyde alcalin
N	= Non
O	= Oui

P	= Paroi primaire
P	= Pression
P _a	= Pression d'air
P _{bi}	= Poids des blocs initiaux
P _{bs}	= Poids sec absolu des blocs
PC	= Pâte chimique
P _c	= Pression capillaire
PCM	= Pâte chimicomécanique
PCTM	= Pâte chimicothermomécanique
P _{ea}	= Poids de l'eau absorbée
P _{ei}	= Poids de l'eau initiale dans les blocs
P _{et}	= Poids de l'eau totale
P _{ex}	= Pression extérieure
P _h	= Pression hydrostatique
PMD	= Pâte mécanique de défibreurs (SGW)
PMP	= Pâte mécanique pressurisée ou sur-pressurisée (PGW- 2,5 bar)
PMPA	= Pâte mécanique au peroxyde alcalin
PMR	= Pâte mécanique de raffineur (RMP)
PMSP	= Pâte mécanique pressurisée ou sur-pressurisée (PGW-S 4,5 bar)
PTM	= Pâtes thermomécaniques
P _v	= Pression de vapeur
Q	= Débit dans le capillaire
r	= Rayon du capillaire
R	= Constante des gaz (8.314 J·mol ⁻¹ ·K ⁻¹)
R ²	= Coefficients de régression
S	= Paroi secondaire
S ₁	= Couche externe de S
S ₂	= Couche centrale de S
S ₃	= Couche interne de S
SCECT	= Surface capillaire effective en coupe transversale
SCR	= Somme des carrés des résidus
S _i	= Siccité - fraction de matière sèche contenue dans le bloc humide
S _p	= Surface des pores
SPX	= Spectroscopie de photoélectron de rayon-X
T	= Température (°C)
TA	= Taux d'absorption
TC	= Taux de compression
T _{eo}	= Teneur en eau originale (gEau/gBois) _o
T _{et}	= Teneur en eau totale
T _K	= Température absolue (K)
UCTAI	= Union internationale de Chimie théorique et appliquée
UQTR	= Université du Québec à Trois-Rivières
V	= Volume de pores
V _{al}	= Volume absorbé par liquide
V _b	= Volume des blocs
V _{ea}	= Volume d'eau absorbée
V _{ei}	= Volume d'eau initial
V _s	= Volume solide
V _v	= Volume vide
X _{com}	= Taux de compression (code)

X_e	= Épaisseur de bloc (code)
X_l	= Longueur de bloc (code)
X_t	= Temps (code)
ρ_e	= Densité d'eau à 22°C

Chapitre 1 - INTRODUCTION

1.1 Problématique

À long terme, le pin gris (*Pinus banksiana* Lamb.) sera sans doute de plus en plus utilisé dans les usines de pâtes et papiers, même s'il n'est actuellement pas l'espèce préférée pour produire des pâtes mécaniques. Premièrement, les espèces largement utilisées, telles que l'épinette (*Picea* spp.) et le sapin baumier (*Abies balsamea* (L.) Mill.), sont de plus en plus rares et coûteuses. Deuxièmement, le pin gris est une espèce abondante, qui croît vite et facilement sur un sol pauvre et est moins dispendieux. Il semble inévitable que les compagnies de pâtes et papiers utiliseront plus de pin gris dans l'avenir.

À cause de ses caractéristiques particulières, l'utilisation du pin gris est plutôt limitée pour la fabrication du papier [1]. Dans la mise en pâte chimique, le pin gris peut être utilisé dans les procédés alcalins, mais il reste une espèce non-désirable pour les procédés au sulfite acide et neutre en raison de ses problèmes de cuisson non-uniforme et de dépôt de poix dans le système de production. Le pin gris n'a pas été utilisé avec succès jusqu'à présent dans la mise en pâte mécanique. Il est évident qu'il n'est pas possible de fabriquer de la pâte mécanique traditionnelle satisfaisante (PMD, PMP, PGW-S, PMR, PTM) avec du pin gris comme essence principale. Dans la mise en pâte mécanique, seulement 20% ou moins de la composition des copeaux est constituée de pin gris dans la plupart des usines de mise en pâte mécanique [1]. Son utilisation dans les procédés de mise en pâte à haut rendement rencontre des inconvénients significatifs [2, 3, 4, 5, 6].

1.2 Objectifs

Les objectifs principaux de cette recherche sont :

- 1) Amélioration de la qualité d'imprégnation chimique avec un pré-traitement mécanique (compression radiale) et un dégazage qui facilitent l'imprégnation chimique dans le but de développer l'utilisation de pin gris dans la mise en pâtes mécaniques.

- 2) Compréhension des rôles des mécanismes de pénétration et de diffusion pendant l'imprégnation chimique.

Les objectifs spécifiques de cette recherche incluent :

- 1) Déterminer l'impact de la compression radiale à différents taux sur le changement des caractéristiques physiques du bois de pin gris.
- 2) Évaluer les effets de diverses variables sur la pénétration de liquide et sur l'absorption chimique des blocs du pin gris; et atteindre une bonne compréhension des mécanismes de pénétration et de diffusion.
- 3) Évaluer l'influence de la dimension des copeaux sur l'absorption chimique et comparer l'efficacité de la compression statique avec celle d'une presse à vis sur l'absorption chimique.
- 4) Optimiser les conditions d'absorption de produits chimiques au niveau de l'uniformité de distribution des produits chimiques.
- 5) Établir les modèles décrivant l'absorption d'eau et l'absorption d'hydroxyde de sodium.

Cette thèse se compose de neuf chapitres.

Le chapitre 1 présente la problématique d'utilisation du pin gris dans la mise en pâte mécanique ainsi que les objectifs de la recherche.

Le chapitre 2 passe en revue la littérature portant sur les caractéristiques chimiques et physiques du pin gris, les divers pré-traitements du bois (mécaniques, physiques et chimiques), les méthodes d'analyse de la distribution des produits chimiques dans le bloc entier et sur la modélisation de l'absorption de liquide et de produits chimiques.

Le chapitre 3 traite des théories sur les traitements mécaniques, l'hystérésis et les mécanismes de pénétration, de diffusion, de gonflement et d'aspiration des ponctuations.

Le chapitre 4 décrit la préparation des échantillons, la méthodologie expérimentale et les procédés utilisés pour atteindre les objectifs de cette recherche.

Le chapitre 5 fait état des résultats expérimentaux et comporte une discussion sur l'effet de la compression radiale sur les caractéristiques physiques des blocs, telles que : Humidité, densité et micro et macro-fissures.

Le chapitre 6 présente les résultats expérimentaux et la discussion sur les effets des variables sur l'absorption d'eau telles que le temps du dégazage, le séchage (le processus d'ajustement de l'humidité) des spécimens, le taux de compression radiale et la puissance de dégazage.

Le chapitre 7 se concentre sur l'effet de variables diverses (taux de compression radiale, dégazage, temps d'imprégnation et température) sur l'absorption de la liqueur et l'absorption d'hydroxyde de sodium, pendant le procédé d'imprégnation; sur l'effet de la compression radiale et du dégazage, sur la distribution d'hydroxyde de sodium, sur l'effet de la dimension de blocs et sur une comparaison de la compression radiale avec la presse à vis sur l'absorption du NaOH.

Le chapitre 8 montre la modélisation des procédés d'imprégnation d'eau et de produits chimiques.

Le chapitre 9 dresse un bilan des résultats et des conclusions générales de cette recherche.

Chapitre 2 - REVUE DE LITTÉRATURE

2.1 Caractéristiques des bois résineux

2.1.1 Propriétés physiques du bois

La figure 2-1 illustre les caractéristiques macroscopiques du bois sur les coupes transversale, radiale et tangentielle [7].

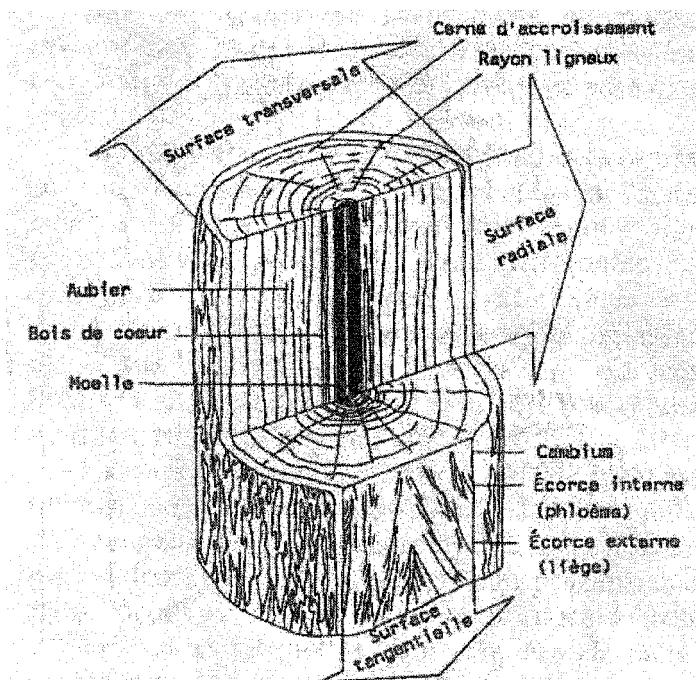


Figure 2-1 Caractéristiques macroscopiques du bois sur les trois coupes (radiale, tangentielle et transversale) d'un tronc de bois [7]

On voit, sur la coupe transversale, les cernes de croissance, les rayons ligneux, l'aubier, le duramen et la moelle. Sur la partie externe du tronc on note le cambium, l'écorce interne et l'écorce externe. Le cambium se compose des cellules initiales qui se divisent en produisant les cellules du bois et de l'écorce. L'écorce se divise en deux parties; les cellules de la partie externe sont mortes tandis que celles de la partie interne sont vivantes. Il faut souligner que les parenchymes dans l'aubier sont vivants mais que les trachéides sont mortes. Dans le duramen, toutes les cellules sont mortes. Pour chaque cycle de croissance annuel du bois un anneau de

croissance apparaît. La partie du bois qui se forme pendant le printemps est appelée le bois de printemps tandis que celle formée pendant l'été ou la dernière partie de la saison de croissance est appelée le bois d'été. En général, les cellules du bois de printemps ont un diamètre radial plus large et une épaisseur de paroi plus mince par rapport à celles du bois d'été. Il est à noter que le pin gris a une proportion importante de bois d'été par rapport à l'épinette noire ou au sapin baumier par exemple. Les rayons se composent de petites cellules soit les parenchymes.

2.1.2 Microstructure du bois résineux et des trachéides

2.1.2.1 Microscopie en trois dimensions

Une vue en trois dimensions d'un bloc de bois résineux [7] est illustrée à la figure 2-2. Les fibres (trachéides) sont alignées dans des rangées radiales assez régulières, orientées parallèlement à l'axe de l'arbre. Les extrémités coniques des fibres recouvrent longitudinalement environ un quart de la longueur de la fibre. Comme il est indiqué précédemment, les cellules du bois de printemps ont un gros lumen, une paroi cellulaire mince et un grand diamètre radial. Leurs ponctuations, qui se trouvent généralement dans la surface radiale, sont grandes. Au contraire, les cellules du bois d'été, quant à elles, ont un petit lumen et une paroi cellulaire très épaisse et un diamètre radial étroit. Les ponctuations du bois d'été, qui se trouvent souvent sur la surface tangentielle, sont comparativement plus petites et moins nombreuses. Ainsi, la plupart des paires de ponctuations aréolées entre les trachéides du bois de printemps se trouvent le long de la partie conique des surfaces radiales. Le nombre de ponctuations par trachéide varie de 50 à 300 dans le bois de printemps et moins dans le bois d'été [8]. Les fluides coulent de trachéides en trachéides par les paires de ponctuations aréolées qui contribuent majoritairement à l'écoulement global pour le bois résineux. En composition volumétrique le bois résineux contient généralement 93% de trachéides longitudinales, 1% de canaux résinifères longitudinaux et 6% de rayons du bois [9].

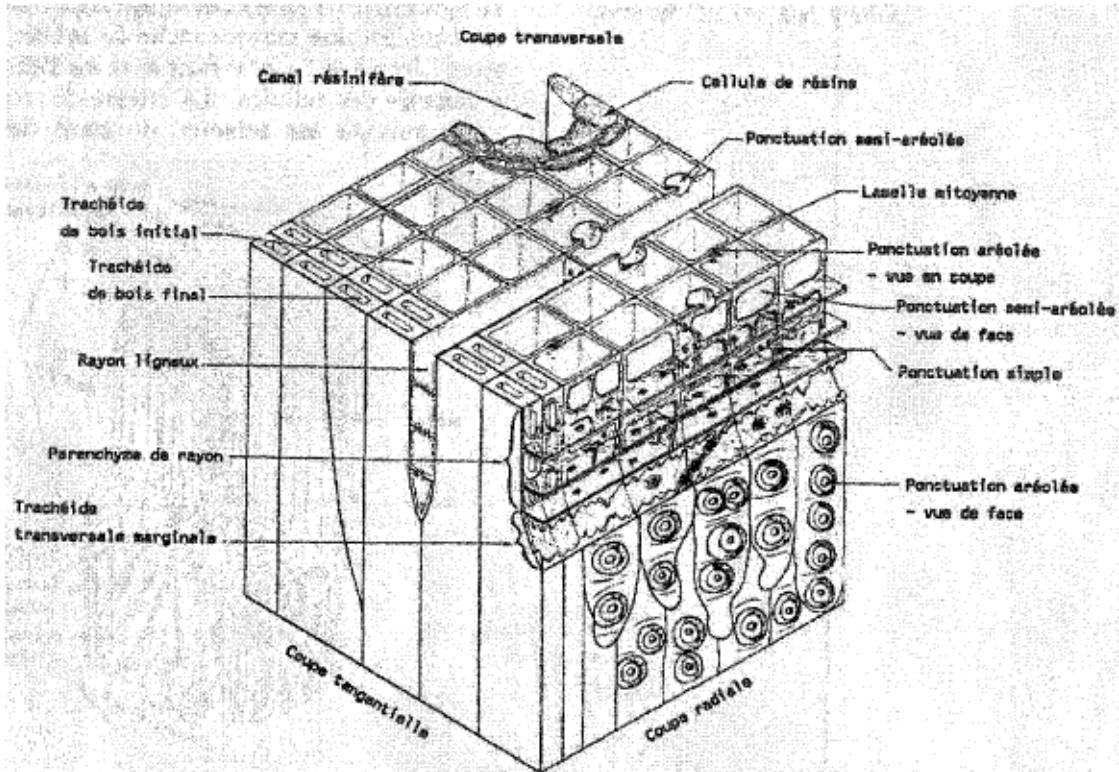


Figure 2-2 Microstructure de bois résineux en vue tridimensionnelle [7]

2.1.2.2 Morphologie de la trachéide

Dans le bois résineux, plus de 90% du bois en volume est constitué des trachéides (fibres de résineux). Les trachéides jouent deux rôles importants soit la conduction de l'eau et le soutien mécanique de l'arbre.

Les figures 2-3a et 2-3b illustrent les trachéides de bois résineux [9]. Les trachéides sont semblables aux tuyaux cellulaires creux, coniques et fermés aux deux extrémités, avec des coupes transversales rectangulaires et elliptiques. Les fibres (trachéides) ont une longueur moyenne d'environ 3,5 mm, un diamètre de trachéide d'environ 33 μm (20-40 μm) et un diamètre de lumen de trachéide de 20-30 μm [9]. La longueur des fibres du pin gris et de l'épinette noire est d'environ 3,5 mm [1]. En se référant à la figure 2-3a, la paroi cellulaire est caractérisée par de nombreuses ponctuations (item 3) qui sont des conduits intercellulaires. L'extrémité des fibres est ronde en vue radiale (item 1) mais elle est pointue (item 2) en vue

tangentielle. La trachéide d'été (b) est plus petite en diamètre radial mais elle possède une paroi plus épaisse que celle de la trachéide de printemps (a). Par conséquent, les propriétés telles que la densité, la flexibilité, la capacité d'absorption de l'eau, le gonflement, etc. de ces deux types de trachéides sont différentes.

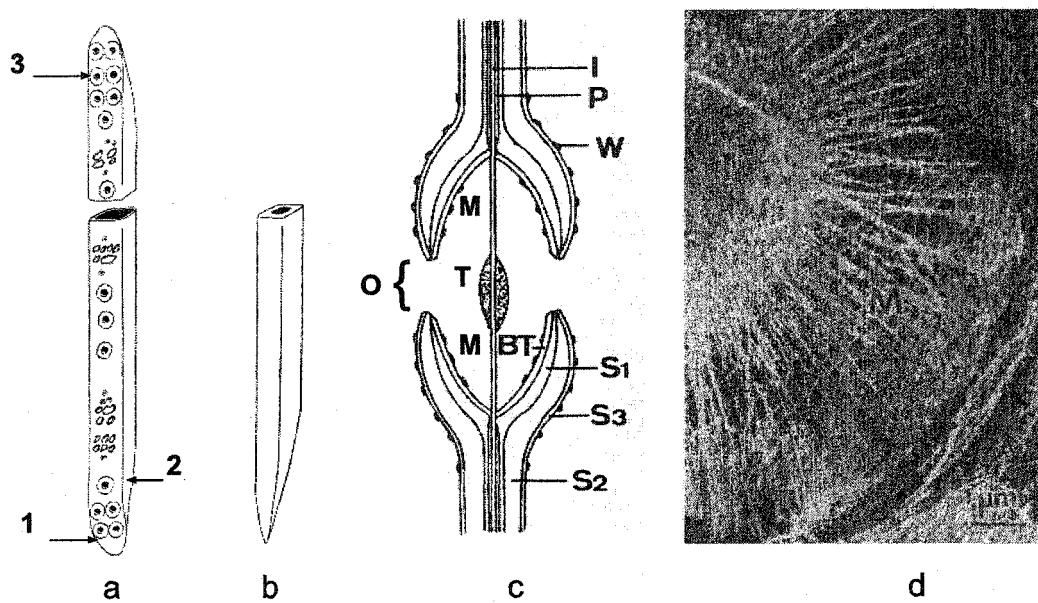


Figure 2-3 (a, b) Trachéide de bois résineux [9], (c) Schéma d'organisation de ponctuations aréolées et (d) Micrographie électronique de la surface d'une membrane de ponctuations de *Cryptomeria Japonica* [10]

2.1.2.3 Structure des ponctuations aréolées

Les ponctuations servent au passage des liquides entre deux cellules adjacentes. Les ponctuations des trachéides de bois résineux sont des ponctuations aréolées. Leur schéma d'organisation est illustré à la figure 2-3c. Les composants des ponctuations sont: la cavité, la margelle (M) avec le tore (T) et l'orifice (O). Dans le cas des ponctuations aréolées, la cavité se rétrécit plus ou moins brusquement du côté du lumen de la trachéide formant ainsi une espèce de lèvre par-dessus la membrane d'ouverture. Le diamètre global des chambres de ponctuations aréolées varie approximativement de 6 à 30 μm , les ponctuations du bois de printemps étant plus grandes que celles du bois d'été. Le diamètre du tore, s'il est présent, est

d'un tiers à un demi le diamètre global de la chambre et celui de l'orifice est approximativement la moitié du diamètre du tore.

La surface de la membrane est illustrée à la figure 2-3d [10]. L'épaisseur de la membrane de ponctuations est une dimension importante affectant la résistance à l'écoulement. Le tore (T) est la partie épaisse et centrale de la membrane des ponctuations aréolées, de forme convexe et se compose du même matériel que la paroi primaire [9]. Il existe typiquement dans les espèces des familles de *Pinaceae* [9] et de *Sciadopityaceae* chez le bois résineux [10].

Généralement, le tore est imperméable aux fluides et ne présente pas d'ouverture apparente. Mais parfois de petits pores sont observés dans certaines espèces. La membrane entourant le tore est appelé la margelle (M), qui consiste en une série de microfibrilles de cellulose formant les rayons du tore vers la périphérie de la chambre de ponctuations. Les ouvertures entre les microfibrilles de la margelle permettent de laisser passer les fluides et de petites particules à travers la membrane de ponctuations. Les ouvertures des ponctuations du bois résineux ont des diamètres effectifs entre 0,02 et 4 μm [9]. Deux ponctuations aréolées forment une paire de ponctuations aréolées, qui a l'influence la plus significative sur l'écoulement.

2.1.3 Ultrastructure et composition chimique du bois résineux

2.1.3.1 Ultrastructure d'une trachéide

Les principales composantes de l'ultrastructure de la paroi cellulaire (figure 2-4) sont la lamelle mitoyenne (LM) et les parois primaire (P) et secondaire (S) [11]. La lamelle mitoyenne, constituée principalement de lignine, est située entre les trachéides voisines. La première couche de la trachéide est la paroi primaire. Les autres sont les parois secondaires S₁, S₂ et S₃. L'ouverture au centre de la trachéide se nomme le lumen. Les parois primaires de deux cellules adjacentes et la lamelle mitoyenne qui cimente ces cellules ensemble, apparaissent comme une seule couche. Cette couche s'appelle la lamelle mitoyenne composée.

La paroi S_2 représente environ 60-80% de l'épaisseur de la trachéide. Toutes les parois de la trachéide contiennent des microfibrilles dans lesquelles se trouve la cellulose.

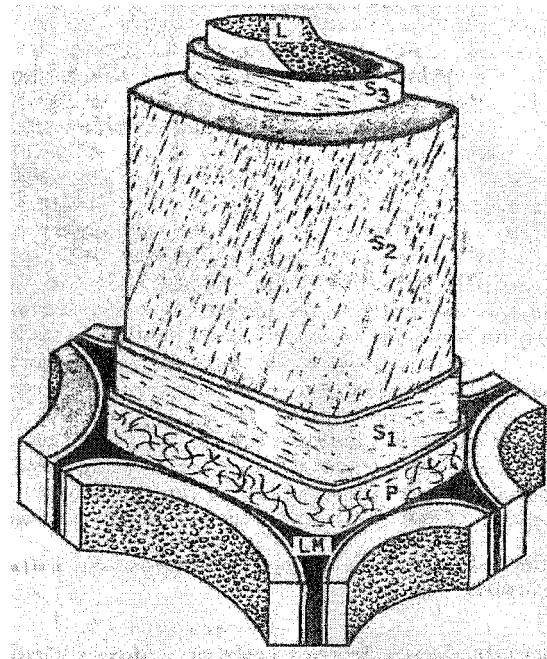


Figure 2-4 Schéma de l'organisation de la paroi d'une trachéide [11]

Les caractéristiques de chaque paroi de fibres comme l'épaisseur et l'orientation des microfibrilles sont résumées au tableau 2-1 [11] et illustrées à la figure 2-5 [7]. Le changement d'orientation des microfibrilles entre les couches S_1 et S_2 cause une discontinuité structurale (la plus grande séparation entre les microfibrilles des parois cellulaires) [12].

Tableau 2-1 Épaisseur de paroi et orientation des microfibrilles

Couche	Épaisseur	Orientation des microfibrilles (sur l'axe de la fibre)		Constituants*
	(μm)	Angle, $^\circ$	Direction	
LMC(LM+P)	0,1-0,4	NA	NA	L + E
P	0,1-0,2	aléatoire	S et Z	C + HC + L + E
S_1	0,2-0,5 (-1,0)	60°-80°	S et Z	C + HC + L + E
S_2	1,0-2,0 (3-8)	10°-30°	S ou Z	C + HC + L + E
S_3	0,1-0,2	50°-90° aléatoire	S et Z	C + HC + L + E

C-cellulose; HC-Hémicellulose; L-lignine et E-extractibles)

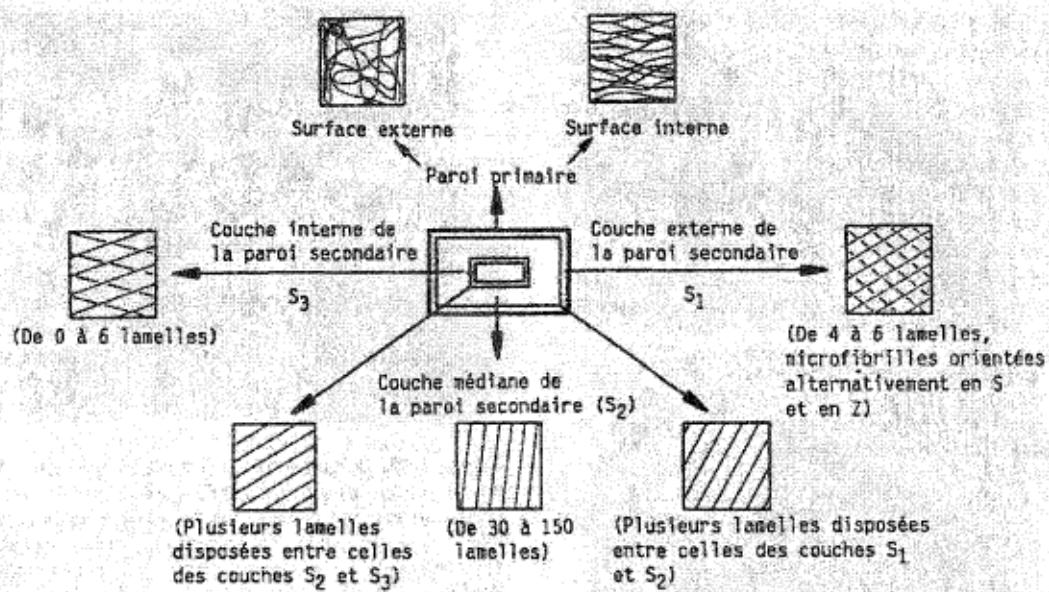


Figure 2-5 Représentation de l'organisation des parois cellulaires illustrant les diverses textures microfibrillaires [7]

La structure microscopique et sous-microscopique de la cellulose est illustrée à la figure 2-6 [7]. Une partie de la fibre (paroi S_2) est composée d'agrégats de macrofibrilles (blanc) avec le matériel contenant des fibres non cellulosiques (noir). Une macrofibrille se compose d'agrégats de microfibrilles, qui, à leurs tours, se composent d'agrégats de molécules de cellulose. En conclusion, les molécules de cellulose sont organisées en série d'unités de cellules qui incorporent l'unité de répétition de base de la cellulose (unité cellobiose) illustrée en tant que deux résidus adjacents de glucose reliés par un atome d'oxygène (lien éther).

Le bois se compose de trois constituants principaux: la cellulose qui est le squelette, les hémicelluloses qui sont la matrice, et la lignine qui est la substance encroûtante qui lie la cellulose et les hémicelluloses ensemble en donnant une rigidité aux parois cellulaires. La lignine cimente également les fibres ensemble, ce qui apporte une grande résistance mécanique au tronc d'arbre. Chimiquement, la lignine, un polymère naturel, est composée principalement d'unités phénylpropanes liées ensemble en trois dimensions. La structure d'une molécule de lignine est très complexe et hydrophobe. La cellulose et les hémicelluloses sont des polysaccharides; ils sont hydrophiles et ont un degré de solubilité semblable. La chaîne cellulosa a deux types de régions – cristalline et amorphe. Le degré de cristallinité

de la cellulose varie selon les sources. La cristallinité du bois résineux est d'environ 65-70%. La chaîne de cellulose est linéaire, raide et fortement retenue dans les régions amorphes entre les régions cristallines. Les hémicelluloses sont des polymères ramifiés amorphes.

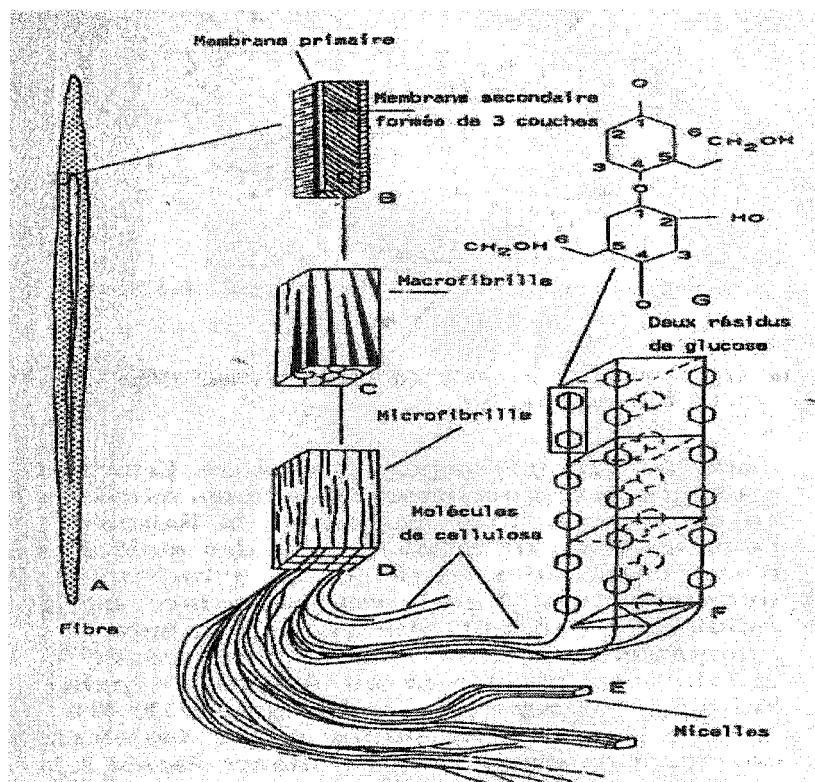


Figure 2-6 Structure microscopique et sub-microscopique de la cellulose [7]

2.1.3.2 Composition chimique du bois résineux

La distribution des principaux constituants chimiques dans le bois résineux [13] est illustrée à la figure 2-7. Bien que la lamelle mitoyenne se compose principalement de lignine, 70-80% de la lignine totale se trouve dans la paroi de S_2 , dû à son grand volume. La concentration des hémicelluloses est très élevée dans les parois P , et les couches S_1 et S_3 .

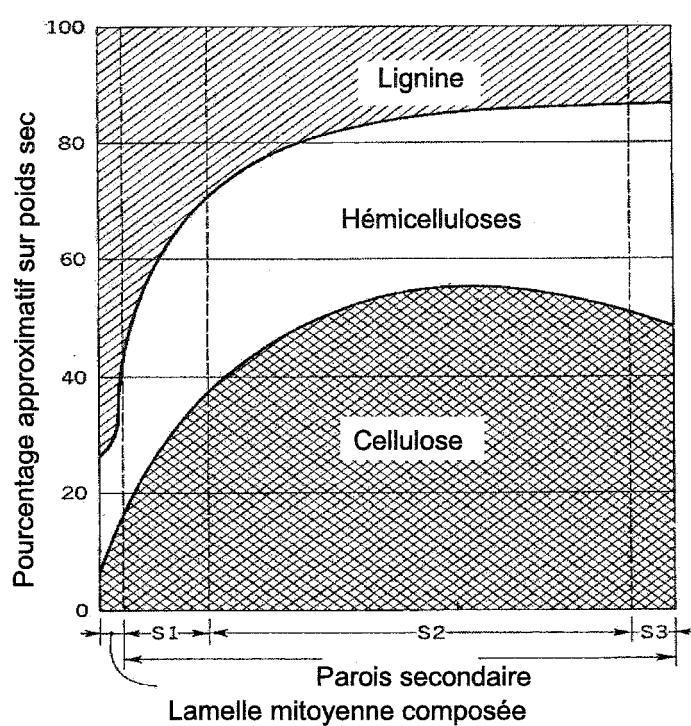


Figure 2-7 Distribution des constituants chimiques principaux dans les parois cellulaires [13]

La figure 2-8 illustre la localisation et les composants chimiques principaux des matières extractibles du bois [14]. Les matières extractibles du bois sont une grande variété de composants chimiques non-structuraux présents dans le bois. Ces composés sont extractibles du bois avec de l'eau ou des solvants organiques ou neutres. Les propriétés, l'occurrence, la composition, la teneur et la fonction des matières extractibles changent avec l'essence de bois. Par exemple la composition et la teneur en matières extractibles des bois résineux et feuillus diffèrent considérablement. Il est remarquable que les matières extractibles du bois dans l'aubier sont des substances avec une certaine hydrophilicité. Les matières pectiques se trouvent à travers la paroi cellulaire, mais elles sont plus élevées dans la lamelle mitoyenne composée [15].

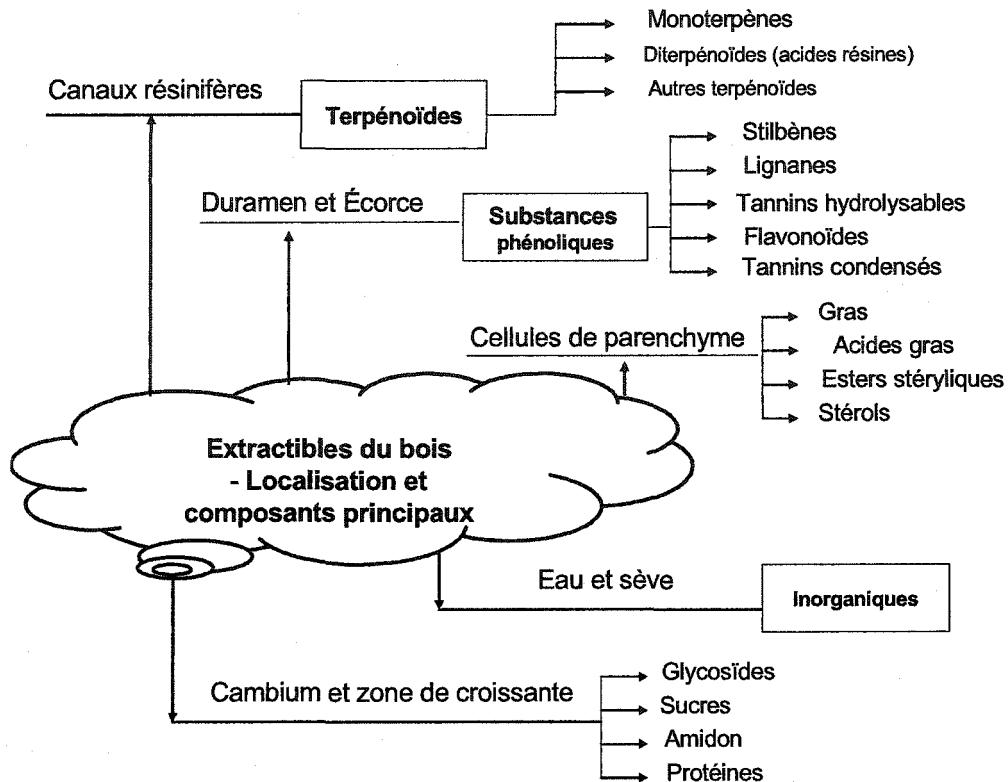


Figure 2-8 Localisation et constituants principaux des extractibles du bois [14]

2.2 Le pin gris comme matière première

Les conifères constituent presque 78% du volume des forêts canadiennes de 26 071,79 millions de m³ [1]. Chez les conifères, le pin gris (*Pinus banksiana* Lamb.) est l'essence commerciale la plus abondante au Canada. Sa présence s'étend depuis la nouvelle Écosse jusqu'au Nord de l'Alberta et vers la région des Grands Lacs, aux États-Unis. Parmi les conifères, les pins représentent 22,4% du volume total de bois résineux ($20\ 256,89 \times 10^6$ m³). Chez les pins, le pin gris ($4\ 112,01 \times 10^6$ m³) est le plus important et représente 20,4% de tout le volume de bois résineux. Son volume est presque le double de celui de l'épinette noire (12%). Depuis longtemps, le pin gris a attiré l'intérêt pour la sylviculture [16] car il croît facilement sur un sol pauvre, peut supporter des climats extrêmement froids et possède une certaine résistance naturelle aux maladies et aux parasites.

2.2.1 Caractéristiques du pin gris

Les caractéristiques physiques et chimiques du pin gris font qu'il demeure une essence indésirable dans la mise en pâte mécanique. La pénétration du liquide dans le bois de pin gris est modérément difficile [16]. Comparé à l'épinette noire, la paroi cellulaire du bois d'été du pin gris est plus épaisse et les matières extractibles dans les solvants organiques sont plus élevées.

Les caractéristiques physiques générales du pin gris et de l'épinette noire sont présentées au tableau 2-2. En général, le pin gris est relativement plus foncé (matières extractibles), le taux de bois d'été plus élevé et la densité plus haute que l'épinette noire. Toutes ces caractéristiques physiques causent une mauvaise qualité des pâtes mécaniques.

Tableau 2-2 Caractéristiques physiques générales du pin gris et de l'épinette

Caractéristique	Pin gris	Épinette noire	Référence
Couleur :			
Aubier	Blanc avec des empreintes jaunâtres	Blanc	16
Duramen	Empreintes rougeâtres	Blanc jaunâtre	16
Blancheur de la surface du bois, %	40,4	42,3	17
Zone de bois d'été	Large	Étroite	18
Rétrécissement%, à 0% humidité			
radical (r)	3,4	4,1	16
tangential (t)	6,5	6,8	16
volumique (v)	10,4	11,3	16
Pourcentage d'humidité			
Bois frais (vert)	51	28	16
Bois séché au four	105	38	16
Gravité spécifique			
Volume frais (vert)	0,39	0,40	16
Volume d'air sec	0,43	0,43	16
Volume séché au four	0,46	0,45	16
Densité, kg/m ³			
Frais (vert)	801	565	16
Four sec	464	448	16

Les caractéristiques morphologiques des fibres du pin gris et de l'épinette noire sont présentées au tableau 2-3 [1]. La paroi cellulaire des trachéides de pin gris est comparativement plus épaisse que celle de l'épinette et pourrait entraîner une consommation d'énergie spécifique plus importante lors du raffinage. Cette caractéristique a aussi une influence non désirable sur les propriétés physiques (rupture et éclatement) des pâtes résultantes.

Tableau 2-3 Caractéristiques physiques des fibres de pin gris et d'épinette

	Pin gris	Épinette noire	Référence
Longueur, mm	3,5 (1,5-5,7)	3,5	16
Diamètre, μm	28 - 40	25 - 30	16
Masse linéique, mg/100m	18,0	15,8	16, 20
Épaisseur de la paroi de la cellule, μm			
Bois de printemps	-	1	16
Bois d'été	-	3,5	16
Bois de printemps (calculée).	5,5	4,6	20
Bois d'été (calculée).	9,7	6,9	20
Rapport de flexibilité			
Bois de printemps	0,77	0,82	20
Bois d'été	0,39	0,51	20
Coefficient de rigidité			
Bois de printemps	1,2	1,1	20
Bois d'été	3,2	2,9	20
Résistance au cisaillement, lb/ po^2	820	800	19
Compression perpendiculaire au fil, contrainte des fibres à la limite de proportionnalité	340	300	19
Tension perpendiculaire au fil, lb/ po^2	350	340	19

Les compositions chimiques du pin gris et de l'épinette noire sont présentées au tableau 2-4 [1]. Il y a quelques différences mineures au niveau des principaux composants chimiques, telles que la lignine, les hémicelluloses et la cellulose, entre les deux essences. La distinction la plus marquée du pin gris, en comparaison avec l'épinette noire, est que le pin gris a un contenu de matières extractibles élevé dans les solvants organiques. Pour un échantillon donné, la quantité de matières extractibles varie selon le type de solvant utilisé et la position des constituants dans le bois. L'éther est le meilleur solvant pour dissoudre les résines et les graisses car elles ont une polarité moléculaire basse, qui est semblable à celle de ce solvant.

Tableau 2-4 Caractéristiques chimiques du pin gris et de l'épinette noire

Composants	Pin gris	Épinette noire	Référence
Lignine, %	27,4	27,3	16
Hollocellulose, %	68,0	71,7	16
Hémicellulose	16,2	15,2	16
Dans les hémicellulose :			
Pentosanes	33,7	36,3	16
Uronique anhydride	15,0	16,7	16
Hexosanes (par déduction)	51,3	47,0	16
Pentosanes totales, %	10,1	7,6	16
Solubilité, %:			
Éther	4,3	1,0	16
	1,6	0,5	20
Alcool-benzène	2,9	2,2	21
Méthanol	3,0	1,6	20
Acétone	8,1		22
Cendre, %	0,2	2,1	16

Les résines peuvent causer un problème de poix sur la machine à papier en raison de leur très basse solubilité dans l'eau, ce qui peut perturber la production. Les résines influencent de façon négative les propriétés optiques et physiques du papier. Les flavones pourraient causer une réversion de couleur du papier pendant l'entreposage. Le pin gris contient moins de matières extractibles dans l'aubier que dans son duramen. Cependant, le duramen contient plus de flavones et moins de composés phénoliques simples [23]. Par rapport à l'épinette noire, le pin gris contient plus de matières extractibles et a une concentration plus élevée en résine et en graisse [24].

2.2.2 Progrès sur la mise en pâte du pin gris

Bien qu'on ait étudié la possibilité d'utiliser des procédés de mise en pâte mécaniques accompagnés d'un traitement inter-étage au peroxyde alcalin, il n'y a aucune grande amélioration des propriétés papetières du pin gris. L'application de peroxyde alcalin par injection durant l'imprégnation des copeaux de pin gris après compression a été beaucoup étudiée au CIPP de l'UQTR. En utilisant une imprégnation au peroxyde alcalin entre les deux

étages de raffinage, Tyrväinen et al. [5, 6] ont réduit de beaucoup le contenu original en matières extractibles d'une pâte de pin gris. Cependant, les propriétés de forces du papier ne sont pas substantiellement améliorées. Lanouette [25] a étudié les effets d'un traitement biologique des copeaux, du traitement inter-étage au peroxyde alcalin, de l'addition de peroxyde dans l'œil du raffineur sur la qualité des pâtes de pin gris afin d'optimiser les conditions de mise en pâte mécanique. Encore ici, il n'a pas été amélioré de façon importante les propriétés de résistance du papier.

2.3 Comportement du bois lors du séchage

En ce qui concerne le comportement au séchage, le pin gris a un rétrécissement relativement inférieur dans les directions radiale, tangentielle et longitudinale [16]. Ceci pourrait signifier que la capacité de gonflement de ces fibres est faible. Que le pin gris ait une densité plus élevée par rapport à l'épinette noire, due à son taux de bois d'été (sa paroi cellulaire épaisse) plus élevé, est une autre caractéristique qui peut affecter l'utilisation de cette essence pour la production de pâte mécanique. Les molécules d'eau dans le bois existent sous deux formes: l'eau liée ou hygroscopique, et l'eau libre ou capillaire [9]. L'eau liée se trouve dans la paroi cellulaire. Elle est unie par des ponts hydrogènes à des groupes hydroxyles de la cellulose et des hémicelluloses, et à un moindre degré sur les groupes hydroxyle de lignine.

2.3.1 Effet du séchage lors de l'enlèvement de l'eau libre

La quantité d'eau libre que le bois peut contenir est limitée par l'espace intérieure ou la porosité du bois. Lorsque le bois vert est séché sous des conditions contrôlées, l'évaporation d'eau se fait premièrement à partir de l'eau libre du bois, qui est sous forme liquide, dans les lumens et dans les vides de la paroi cellulaire du bois. L'eau libre est retenue seulement par les forces capillaires. Elle n'a pas d'effet sur le gonflement et le rétrécissement du bois. Par conséquent, elle n'influence pas la plupart des autres propriétés physiques car ces propriétés sont contrôlées par l'eau hygroscopique.

Pour les bois verts, le bois de printemps a une plus grande perméabilité en comparaison avec le bois d'été car le dernier a une densité plus élevée et des ponctuations plus petites. Cependant pour les bois séchés le contraire peut se produire à cause de l'aspiration des ponctuations plus importantes dans le bois de printemps au cours de séchage, ce qui réduit l'écoulement du liquide tel qu'illustré à la figure 2-9 [9].

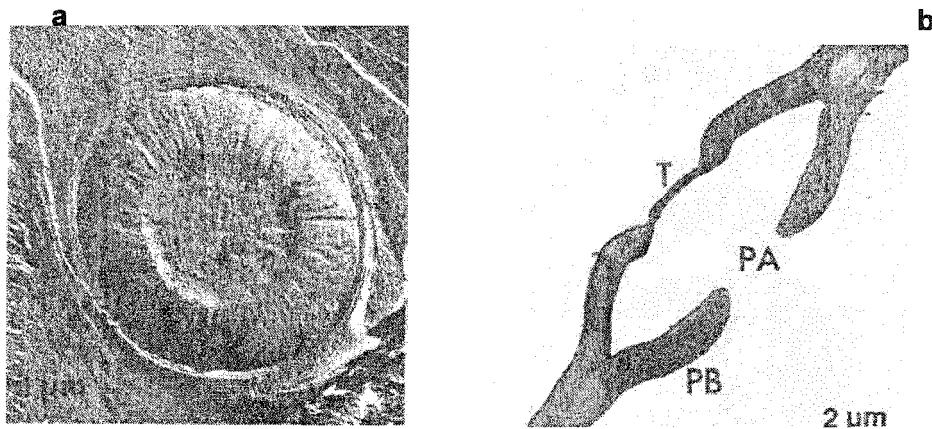


Figure 2-9 Ponctuation aréolée aspirée (a) en face et (b) une coupe transversale des parois [9]

Siau [9] a bien résumé l'aspiration des ponctuations aréolées due au séchage du bois de résineux. En général, le duramen a une faible pénétration du liquide comparé à l'aubier. Ceci est dû au dépôt des matières extractibles dans le duramen, résultant du décès des cellules de parenchymes; donc à un rapport plus élevé de ponctuations aspirées dans la partie plus ancienne de l'arbre avant le séchage, lorsque la teneur en humidité est au dessous du point de saturation des fibres. Dans le duramen séché, le bois d'été est pénétré plus facilement que le bois de printemps, parce qu'il y a moins d'aspiration des ponctuations. Le duramen est presque toujours moins perméable que l'aubier dû à l'aspiration des ponctuations.

2.3.2 Effet du séchage lors de l'enlèvement de l'eau liée

La teneur en humidité d'eau liée ou hygroscopique est limitée par le nombre d'emplacements d'adsorption disponibles et le nombre de molécules d'eau qui peuvent être tenues sur un site de

sorption. C'est l'eau liée qui cause le gonflement, le rétrécissement ou les changements de la plupart des autres propriétés physiques parce que les eaux hygroscopiques sont liées avec les parois cellulaires par des liaisons hydrogènes.

Le point de saturation des fibres (PSF) a été défini comme la teneur en humidité pour laquelle les parois cellulaires sont saturées avec de l'eau liée. Cependant, il n'y a pas d'eau libre dans les lumens. L'humidité à saturation des fibres est d'environ 30% basé sur le bois séché au four [26]. La teneur en humidité équilibrée avec une humidité relative donnée s'appelle la teneur d'humidité d'équilibre. En général, une augmentation d'effort de compression sur un spécimen du bois diminue la teneur en humidité à l'équilibre. La teneur en humidité d'équilibre est plus haute pendant la désorption que pendant l'adsorption, avec un rapport approximatif de 0,8 entre l'adsorption et les valeurs de désorption à une humidité relative donnée.

La figure 2-10 illustre la distribution en teneur d'humidité d'équilibre du bois en ce qui concerne la pression de vapeur relative [26]. La courbe supérieure représente la condition où le bois est séché à partir du point de saturation des fibres jusqu'à une condition de séchage au four; c'est une courbe de désorption. La courbe inférieure représente la condition quand le bois adsorbe l'humidité de l'état sec au four jusqu'au point de saturation des fibres; c'est une courbe d'adsorption. Donc, le phénomène reproduit à la figure 2-10 est l'hystérésis (un retard) - un effet qui s'est produit dans le bois par un changement des forces lors du séchage du bois durant l'enlèvement de l'eau liée. Il semble que l'effet d'hystérésis soit typique à beaucoup de matériaux hygroscopiques tels que bois, coton, fibres et cellulose [13, 26].

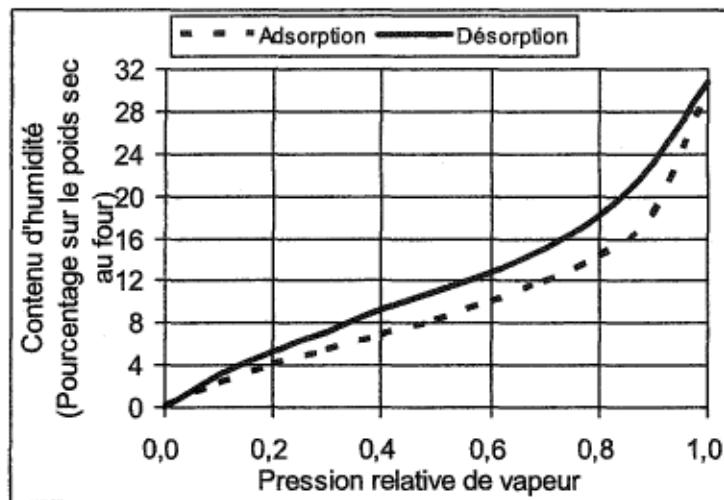


Figure 2-10 Teneur d'humidité d'équilibre du bois en fonction de la pression relative de vapeur - courbes d'adsorption isotherme et de désorption isotherme de bois [26]

Par contre, lorsque la désorption est effectuée en condition non contrôlée, les fissures visibles peuvent apparaître sur la surface des spécimens de bois. Fengel et Wolfsgruber [27] ont prouvé que des sapins, soumis au séchage, ont souffert de fissures qui ont été observées dans la région la plus faible, c'est à dire entre les couches S1 et S2 de la paroi cellulaire secondaire. Wallstrom et Lindberg [28] ont utilisé, dans leurs études sur l'imprégnation, des spécimens de bois séchés en condition non contrôlée. Ces spécimens séchés ont donc pu contenir des fissures.

2.3.3 Effet du séchage en conditions spéciales

Sous conditions spéciales, le bois peut être séché par centrifugation, lyophilisation ou par échange de solvant. Lorsque les spécimens saturés d'eau sont séchés par centrifugation, les membranes des ponctuations peuvent se comporter différemment dépendant des différentes vitesses de séchage utilisées. Park et al. [29] ont observé que la membrane de ponctuations de l'aubier de *Sugi* s'est refermée au niveau de l'orifice de ponctuations quand le gradient de pression causé par une force centrifuge atteint un seuil d'environ 0,119 à 0,178 MPa. La membrane était brisée par un gradient de pression de 0,332 MPa [29]. Selon ces chercheurs, il

est possible de déterminer le gradient de pression produisant l'aspiration de ponctuations et la fracture de la membrane de ponctuations de l'aubier de bois résineux par centrifugation.

L'aspiration de ponctuations peut être évitée ou réduite pendant le séchage du bois par une modification du procédé de séchage afin d'éliminer ou de réduire les forces de tension superficielles [9]. Cette approche inclut la technique de lyophilisation et l'échange de solvants. Dans le cas de lyophilisation, le bois vert est d'abord congelé et placé sous vide sous une pression absolue de moins de 0,46 cm Hg ce qui correspond au point critique de l'eau au-dessous duquel la glace sublime. Les forces de tension de surface, se produisant à l'interface entre l'eau et l'air où la dessiccation (déshydratation) à l'air se produit, sont éliminées sous ces conditions.

Des forces de tension de surface peuvent être réduites considérablement par le séchage au moyen d'échange de solvants. Dans ce procédé, l'eau libre est échangée avec des solvants ayant une tension de surface beaucoup plus faible. Les solvants employés pour réduire la proportion de ponctuations aspirées et maintenir la surface spécifique comprennent le mélange d'alcool/benzène [30], le méthanol, l'acétone [9] et le pentane [31]. Habituellement, on pense que c'est la réduction considérable des forces de surface, par les solvants organiques, qui remplacent l'eau dans le bois vert. Cependant, les solvants organiques peuvent dissoudre des matières extractibles dans les membranes de ponctuation et, par conséquent, peuvent aussi modifier les ouvertures des membranes (passages critiques du liquide dans le bois) (figure 2-3).

2.4 Traitements du bois avant raffinage

Les traitements mécaniques et physiques des copeaux peuvent être utilisés avant le raffinage afin d'améliorer l'imprégnation chimique et les propriétés papetières des pâtes mécaniques.

2.4.1 Pré-traitements mécaniques

La dimension des copeaux a une influence directe sur la qualité de l'imprégnation, laquelle influence finalement la qualité des pâtes et papiers. Les pré-traitements mécaniques peuvent séparer et délaminer les fibres des copeaux, tout en augmentant leur surface spécifique et en favorisant une bonne imprégnation. Les produits chimiques agissent de façon plus uniforme à l'intérieur des copeaux. Cependant, il faut minimiser la coupure des fibres par des traitements mécaniques car cela peut diminuer les propriétés mécaniques des pâtes. Le pré-traitement mécanique, par le clivage initial des copeaux, influence beaucoup les caractéristiques de la pâte finale [32, 33]. Le processus de pré-traitement mécanique peut être réalisé par des compressions dynamiques et statiques. Des études de base sur le comportement mécanique du bois concernant le défibrage ont été concentrées principalement sur des propriétés de rupture [34,35] ou sur les propriétés viscoélastiques [36, 37, 38] du bois saturé d'eau.

2.4.1.1 Compression dynamique

La compression dynamique s'explique par l'entrée et la sortie continue des copeaux dans une presse à vis. Une presse à vis sans fin est actuellement utilisée dans l'industrie de pâte mécanique pour comprimer les copeaux de bois avant l'imprégnation. Les unités de presse commerciales incluent les systèmes de Prex™, d'Impressafiner™, et de Bi-Vis™ [39]. Le système de PREX-impregnator (Metso) et le système conique d'imprégnateur à vis (Andritz) sont largement employés dans le procédé de PCTM.

La caractéristique principale des alimentateurs à bouchon est la vis sans fin dont l'espace disponible pour les copeaux diminue de l'entrée vers la sortie. Un paramètre, appelé rapport de compression, est donné par le volume des copeaux à l'entrée sur celui de la sortie. La compression effective des copeaux varie en fonction de la position dans l'appareil et de la conception de ce dernier. Dans l'industrie papetière, le rapport de compression varie de 2:1 à 4:1. La structure des copeaux est donc ouverte après le pressage par une presse à vis, ce qui augmente la surface spécifique des copeaux disponibles pour l'imprégnation chimique.

De plus, pour créer des changements permanents dans les parois cellulaires, il semble qu'il faut utiliser au moins un rapport de compression de 3,5:1 [40]. À ce rapport, les forces de compression et de cisaillement créent des micro-fissures [40, 41, 42, 43] dans la structure fibreuse. Les micro-fissures créées agissent comme sites d'initiation à la séparation des fibres. En outre, elles servent à la pénétration de la liqueur de cuisson et à l'absorption de produits chimiques, rendant l'imprégnation plus efficace [44]. Cependant, les micro-fissures ou micro-compressions présentes en trop grand nombre risquent de diminuer les propriétés physiques de la pâte, pouvant résulter en une coupure des fibres lors du raffinage [44]. La compression mécanique des copeaux, par la vis de compression, a réduit de 20% la longueur moyenne des fibres [45, 46].

La haute compression a aussi pour but d'expulser de l'eau, de l'air et des matières organiques des copeaux [47], comme dans les alimentateurs à bouchon. Les matières organiques les plus indésirables sont les matières colorantes et les constituants résineux qui sont responsables du problème de poix. À des rapports plus élevés, la haute compression retire non seulement une partie de l'humidité des copeaux mais aussi diminue la grosseur des copeaux [44]. Le pressage par une presse à vis, sous les efforts combinés de la compression, du cisaillement, de la tension et de la torsion, produit des particules de bois qui sont tordues et brisées. L'effet de la torsion est particulièrement évident avec des gros et longs copeaux. Selon Hearn [48], l'effort de cisaillement provoqué par la torsion d'un matériel rectangulaire mince est lié à sa dimension, les matériaux larges et épais subissent un effort de cisaillement plus élevé que ceux étroits et minces.

Le pré-traitement des copeaux, par compression mécanique, est une façon efficace d'améliorer la qualité de pâte et de diminuer la consommation d'énergie de raffinage. Plusieurs chercheurs ont montré, en se basant sur l'expérimentation, que la compression des copeaux avant le raffinage (sous différentes formes) diminue la consommation d'énergie de mise en pâte [40, 42, 49, 50, 51].

Dans l'industrie, l'effet du système d'imprégnation peut être pertinemment décrit par les équations suivantes :

$$\text{Taux de compression (TC)} = (\text{kg/min de fluide expulsé}) / (\text{kg/min de bois alimenté})$$

$$\text{Taux d'absorption (TA)} = (\text{kg/min de liquide absorbé}) / (\text{kg/min de bois alimenté}).$$

La teneur en humidité des copeaux imprégnés augmente selon le taux de compression (TC) et le taux d'absorption (TA) [52]. Ces deux taux changeront selon le niveau initial d'humidité et le degré de compression qui peut être réalisé; les taux plus élevés sont préférables.

La compression par rouleaux, une action mécanique dynamique, représente une technique simple pour améliorer l'imprégnation des copeaux. La compression par rouleaux résulte en la séparation partielle des fibres et la déformation des fibres du bois de printemps, selon le taux de compression. Dans ce système, les copeaux sont soumis à des forces diverses, principalement la compression au début et puis le cisaillement qui augmente brusquement après la densification des zones du bois de printemps. Donc les phénomènes sont au début l'expulsion d'air et de liquide des copeaux et puis la délamination de la matrice ligneuse par la force de compression et de cisaillement. Lorsque les copeaux prennent de l'expansion, un gradient de pression est créé dans les espaces interstitiels des copeaux entraînant la liqueur à l'intérieur de la structure de bois et agissant comme une éponge pressée. Cette technique de compression était utilisée dans les procédés de mise en pâte chimicomécanique pour diminuer la consommation d'énergie et améliorer la qualité de la pâte [53, 54, 55]. Cependant, le principal souci de cette méthode est la possibilité d'endommager les fibres. Ceci se produit quand les copeaux sont comprimés sur une petite zone sous une concentration de contraintes extrêmement élevées.

2.4.1.2 Compression statique

La compression statique est définie par l'entrée et la sortie à intervalles constants des copeaux dans une presse. Selon la direction de la compression relativement à l'axe des fibres, il y a compression radiale, longitudinale ou tangentielle. Dans la compression radiale, la force est

appliquée perpendiculaire au grain de copeaux et aux cernes de croissance. En fait, c'est un procédé de densification. Un paramètre, le taux de compression, est utilisé dans cette étude pour définir le pourcentage de réduction en épaisseur de l'échantillon déformé sur l'épaisseur initiale.

Les résultats de plusieurs chercheurs pour l'application d'un cycle de compression/décompression radiale, à 100°C, du bois de sugi (*Cryptomeria japonica*) humide sont résumés et illustrés à la figure 2-11 [10]. On peut noter qu'un retour élastique presque complet était observé lorsque le niveau de contrainte du premier chargement restait faible dans la marge linéaire. Le comportement des copeaux lors de la compression est étudié à taux de compression élevé dans le but d'obtenir de l'information sur une possible économie d'énergie pendant le procédé de raffinage [56, 57]. Les parties du bois où la densité est la plus faible (c'est-à-dire le bois de printemps) sont d'abord écrasées, puis celles un peu plus denses et ainsi de suite jusqu'à ce que les parties de bois, avec la densité plus élevée (le bois d'été), soient aussi écrasées [10]. Lorsqu'une partie est écrasée à un certain niveau, elle est endommagée et se comportera différemment plus tard pendant l'application des forces.

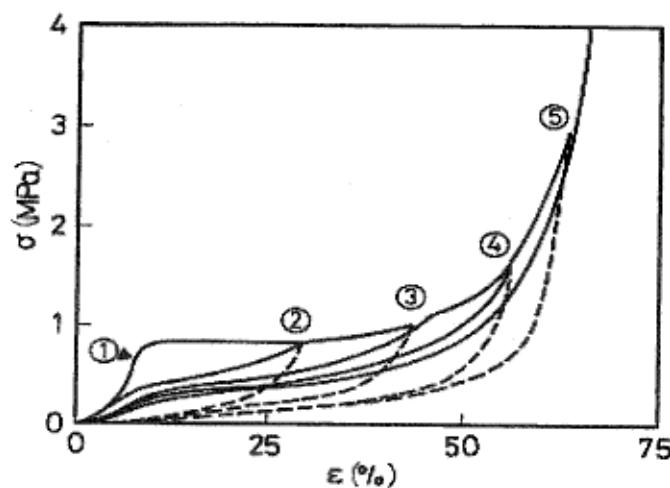


Figure 2-11 Courbes de l'effort nominal avec l'augmentation de la déformation pour un cycle de compression radiale pour le bois humide de sugi à 100°C [10]

Aucune indication de dommages dans les parois cellulaires n'a été observée en ce qui concerne les observations au microscope électronique à balayage (MEB) [10]. Cependant,

l'irréversibilité du procédé de déformation suggère l'occurrence de quelques changements structurels à l'intérieur des parois cellulaires.

Law et Yang [58] ont déjà bien étudié l'effet de la compression radiale au taux de compression environ 65-70% sur la création de macro-fissures et constaté que les fissures se produisent principalement dans la couche S_1 de la paroi secondaire. La compression statique radiale [2, 45] crée principalement des ruptures (fissures) entre les fibres et la délamination (dislocation) des parois cellulaires et peu de séparation de fibres. Law et al. [46] ont comparé l'effet de la compression statique à celui de la presse à vis. Ils ont constaté que la compression mécanique des copeaux a réduit la longueur moyenne des fibres, qui était particulièrement évidente pour la presse à vis. La baisse en longueur moyenne des fibres, pour les copeaux comprimés, par la presse à vis est de 4 à 20%, alors que celle pour les copeaux comprimés, par une presse hydraulique, est de 1 à 3% en comparaison avec des copeaux non traités.

La compression longitudinale a été étudiée non seulement sur des spécimens de bois mais aussi sur des fibres individuelles de pâte Kraft [59, 60]. La compression axiale statique du bois sépare des fibres, en particulier dans la zone entre le bois d'été et le bois de printemps [61, 62], puis il y a dislocation des parois cellulaires dans la couche S_1 [40]. De plus, la compression produit facilement de petits plis dans les parois cellulaires qui deviennent progressivement plus grands avec une augmentation de force de compression [63]. Donc, il y a de grands risques de bris de fibres. En outre, la résistance axiale de compression d'une matrice de bois est beaucoup plus grande que la résistance transversale. La compression tangentielle statique a le même effet, soit une séparation non-uniforme des fibres, en particulier dans les régions entre le bois d'été et le bois printemps. La compression longitudinale est plus efficace que les compressions transversales (tangentielle et radiale) [61] sur le changement structural.

Jusqu'à maintenant, la presse à vis représente le principal système d'imprégnation des copeaux dans l'industrie de mise en pâte mécanique. Cependant, la rupture longitudinale des fibres est un souci important avec la presse à vis [46, 64, 65, 66]. Ce type d'équipement réduit substantiellement la dimension des copeaux, tandis que la presse à plateaux produit peu de bris

des copeaux en comparaison avec les copeaux non traités [46]. Le pré-conditionnement des copeaux par une compression statique à travers les grains s'est avéré plus avantageux que la presse à vis en terme de qualité de pâte et de gain énergétique. Bien que les résultats de raffinage des blocs de bois comprimés dans la direction axiale soient intéressants, l'application de cette méthode aux copeaux industriels de formes changeantes est difficile pour des raisons pratiques. La compression radiale est une façon d'améliorer l'absorption et l'uniformité de distribution des produits chimiques dans la matrice ligneuse, améliorant ainsi la qualité de fibres.

2.4.2 Pré-traitements physiques

Plusieurs méthodes physiques sont disponibles pour améliorer la pénétration de la liqueur dans les copeaux de bois, y compris l'étuvage de copeaux, l'utilisation d'une haute température de liqueur et l'application d'un grand gradient de pression au cours de l'imprégnation.

2.4.2.1 Étuvage ou chauffage à la vapeur

L'étuvage à la vapeur a été intensivement employé pour améliorer l'imprégnation chimique des copeaux. Il atteint deux objectifs. Le premier est de déplacer l'air des copeaux, puis de créer un vide partiel à l'intérieur des copeaux. Ceci est accompli lorsque les copeaux chauds sont submergés dans une liqueur de cuisson froide et que la vapeur dans les copeaux se condense [67]. De plus, l'étuvage à la vapeur pendant une longue période de temps peut hydrolyser des membranes de ponctuations, ce qui affaiblit la membrane et les liens entre le tore et les lèvres de ponctuations, minimisant l'aspiration des ponctuations [68].

Une haute température réduit la viscosité de la liqueur, améliorant ainsi la facilité de pénétration. Le chauffage, à l'aide des micro-ondes, augmente la perméabilité du bois et l'accès des produits chimiques au bois parce que la haute pression de vapeur crée, à l'intérieur du bois, par le chauffage pourrait briser des membranes de ponctuation et des extrémités des vaisseaux [69]. Le chauffage par micro-ondes dégage immédiatement de la chaleur dans le

bois entier. L'énergie micro-onde absorbée dépend de la polarisabilité des produits chimiques de la liqueur d'imprégnation [70]. Donc, les micro-ondes peuvent être employés comme une source de chaleur pour réduire le temps de chauffage tout en augmentant l'uniformité de distribution des produits chimiques dans la matrice ligneuse.

2.4.2.2 Application du gradient de pression

L'augmentation du gradient de pression aidera à diminuer le temps d'imprégnation des copeaux. On peut augmenter le gradient de pression de deux façons, soit par augmentation de la pression de l'environnement en dehors des copeaux ou par diminution de la pression absolue dans les copeaux. On peut aussi combiner les deux méthodes ci-dessus.

La technique utilisant une haute pression est généralement employée en usine pour améliorer la pénétration de liquide dans les copeaux de bois. La pression élevée améliore la pénétration (ou mouvement) de liquide en comprimant l'air occlus dans les espaces vides du bois. Des cuissons réalisées sur des copeaux imprégnés sous pression ont produit des pâtes d'une uniformité supérieure. Cette méthode de cuisson nous permet également d'obtenir une réduction de l'indice de Kappa avec moins de variation de ce dernier. On obtient aussi un plus grand rendement en pâte et une chute du taux de rejets [71, 72].

L'influence d'une haute pression sur l'absorption de liquide dans des blocs de bois a été étudiée par des chercheurs [73, 74]. Ils rapportent que l'absorption de liquide par les copeaux augmente avec une pression élevée favorisant la pénétration de liquide dans les capillaires du bois. D'autres études démontrent aussi qu'une forte pression peut améliorer largement l'uniformité de distribution de produits chimiques dans les blocs imprégnés [75].

L'effet d'une augmentation de pression graduelle sur la pénétration du liquide, pendant de courts temps d'imprégnation (3 à 15 minutes), a été étudié [76]. Dans cette étude, la courte période de traitement est utilisée pour éviter que le bois ne s'effondre. Les résultats ont prouvé que la pénétration à une pression plus élevée était plus complète. Blodgett et al. [77] ont utilisé

l'imprégnation sous vide pour le procédé de mise en pâte mécanique au peroxyde alcalin (MPPA) sur des bois feuillus à haute densité et ont démontré que l'imprégnation sous vide était efficace. Le brevet d'Aho [78] décrit un procédé et de l'équipement pour un pré-traitement de matière cellulosique. Par cette méthode, des copeaux de bois sont soumis à un vide de 0,1-0,5 bars pour environ 0,5 minutes, puis, la liqueur chimique est introduite à une température plus basse que son point d'ébullition à cette pression relative. Le mélange de copeaux et de liqueur est alors exposé à la pression atmosphérique plus élevée pendant un temps suffisant pour permettre à la liqueur de pénétrer dans les copeaux. D'autres moyens pertinents d'imprégnier des copeaux combinent une évacuation de l'espace autour des copeaux et puis une inondation des copeaux avec la liqueur de mise en pâte sous pression [79].

2.4.3 Imprégnation chimique et méthodes d'analyse

Les prétraitements chimiques sont essentiels pour produire des pâtes chimiques et chimicomécaniques. Les produits chimiques utilisés sont principalement : l'hydroxyde de sodium (NaOH), l'hydroxyde de sodium + le sulfure de sodium (Na₂S), le sulfite de sodium (Na₂SO₃), le bisulfite de sodium (NaHSO₃), le NaOH + le peroxyde d'hydrogène (H₂O₂), etc [39]. Dans cette revue bibliographique, on se concentrera sur les effets de l'imprégnation des copeaux dans une liqueur d'hydroxyde de sodium.

2.4.3.1 Importance d'une imprégnation uniforme

L'imprégnation uniforme des copeaux du bois avec des produits chimiques est d'une grande importance dans la production de pâte chimique (PC), de pâte mécanique au peroxyde alcalin (PMPA), de pâte chimicomécanique (PCM) et de pâte chimicothermomécanique (PCTM). Elle assure une distribution homogène des agents réactifs dans toute la matrice ligueuse. Avec une distribution homogène des réactifs, la cinétique de réaction désirée sera également uniforme dans tout le système et le produit visé sera obtenu avec une sélectivité accrue. Cette stratégie est commune à une variété de procédés appliqués sur une variété de matériaux lignocellulosiques.

La non uniformité de l'imprégnation amène comme conséquence une pâte de mauvaise qualité, des fibres plus raides, des liaisons plus faibles, des rejets et des fines plus élevés ainsi que des propriétés de résistance mécanique inférieures [80, 81, 82, 83, 84]. Pour éviter de créer des régions non imprégnées dans un copeau de bois, la dimension des copeaux devrait être réduite, et des macro et micro-fissures devraient être créées en utilisant des presses à vis fonctionnant à un rapport de compression élevée [85, 86, 87]. L'imprégnation de copeaux industriels comprimés par une presse à vis avec l'hydroxyde de sodium ou le sulfite de sodium améliore la distribution des produits chimiques et produit une pâte chimicomécanique et chimicothrmomécanique avec une plus haute résistance à la traction (rupture) [50, 88, 89] et dans certains cas aussi une plus haute résistance à la déchirure [50].

2.4.3.2 Pénétration et diffusion

2.4.3.2.1 Définition

Stone [90] a défini distinctivement la pénétration et la diffusion. D'après Stone, la pénétration est le mouvement du liquide dans les capillaires du bois sous l'influence d'un gradient de pression. Ce mécanisme peut être extrêmement rapide sous des conditions favorables. En ce qui concerne la diffusion, elle se rapporte au mouvement des ions ou des molécules d'une substance dans l'eau ou d'un solvant sous l'influence d'un gradient de concentration; un processus comparativement lent.

Très souvent l'imprégnation est considérée comme un processus de diffusion-réaction des échantillons de bois à l'humidité élevée et la pénétration complète des copeaux est négligée [91, 92, 93, 94, 95]. Sous des conditions industrielles, cependant, cette prétention est loin de représenter la réalité car l'air occlus peut être présent dans les copeaux imprégnés. Dans d'autres cas, l'imprégnation est considérée comme un processus de pénétration et la diffusion est négligée [73, 96]. Un processus d'imprégnation commence par la pénétration de liquide et se poursuit avec une diffusion chimique. La pénétration et la diffusion sont deux mécanismes

qui se produisent très souvent ensembles. Il est important de tenir compte de ce fait. Cependant, l'absorption de liquide représente principalement la pénétration; et l'absorption de produits chimiques est influencée par la combinaison de pénétration de liquide chimique et de diffusion des produits chimiques.

Naturellement, la vitesse de pénétration de liquide dépend non seulement de la pénétrabilité des échantillons de bois, mais dépend également de la pression initiale (gradient de pression). Généralement, les conditions d'imprégnation optimales, telles que l'humidité du bois inférieure et une grande force de pénétration (gradient de pression), peuvent favoriser la pénétration. Mais la diffusion est extrêmement importante pour obtenir une distribution chimique uniforme dans les parois cellulaires de bois et une bonne qualité des pâtes chimiques, car l'absorption chimique se compose de produits chimiques non seulement de pénétration mais également de diffusion.

Le dégazage par étuvage ou sous vide ainsi que l'utilisation d'une haute pression sont deux méthodes pour augmenter la force de pénétration. Le processus d'imprégnation, qui utilise le vide et la haute pression, améliore la pénétration et la distribution des produits chimiques dans le bois traité [97]. Dans ce processus, les matériaux qui ont besoin d'imprégnation sont d'abord mis sous vide avant d'ajouter la liqueur d'imprégnation. Puis, on applique une haute pression à ce système d'imprégnation. D'autre part, en étuvant des copeaux à la vapeur et sous pression élevée, il est possible de réduire de manière significative la quantité de rejets après la cuisson et d'abaisser l'indice kappa [98]. Cette technique de cuisson pourrait réduire l'effet secondaire des produits chimiques tels que le noircissement alcalin.

La diffusion se produit quand il y a un gradient de concentration entre deux endroits quelconques dans un système. La vitesse de diffusion est commandée par le gradient de concentration, la température et la surface effective de diffusion. Bien que les liqueurs alcalines de mise en pâte soient capables de pénétrer le bois dans toutes les directions et à un taux excédant celui des liqueurs acides de mise en pâte, il y a des dimensions maximales de copeaux au-dessus desquelles l'irrégularité de la mise en pâte devient prononcée. Cependant,

le rapport entre les taux de diffusion est inférieur aux distances géométriques correspondantes des copeaux, faisant de l'épaisseur des copeaux la dimension critique, contrairement à la longueur de copeaux dans les processus de mise en pâte neutres et acétiques.

L'alcalinité des liqueurs de cuisson est un facteur extrêmement important. Pour une cuisson au sulfite neutre ou acide, le taux de diffusion dans la direction longitudinale est considérablement plus élevé que celui dans la direction transversale. Cependant, lors d'une cuisson kraft, le taux de diffusion dans la direction longitudinale est seulement un peu plus élevé. Une comparaison de la pénétration avec la diffusion est résumée au tableau 2-5.

Tableau 2-5 Comparaison entre la pénétration et la diffusion

	PÉNÉTRATION	DIFFUSION
Se produit dans	les passages de liquide: lumens, ouvertures macro et micro- fissures	toute région chargée d'eau
Optimale dans les bois	secs	saturés d'eau
Difficile dans les bois	remplis l'eau	secs (cristallisé)
Efficace sur des distances	longues (direction axiale)	courtes seulement
Dans la direction perpendiculaire aux fibres	non efficace	efficace
Essences: bois d'aubier et bois de duramen; résineux et feuillus	très grandes différences	petites différences entre différentes essences
La densité du bois	pas affectée	affectée
Composition de la liqueur	peu importante	largement affectée
Concentration de la liqueur	peu importante	largement affectée
Gradient de pression	très grande influence	peu d'influence
Température	affectée sur le gradient de pression et pénétration	affectée grandement

Lorsqu'on compare l'effet de la compression des copeaux dans l'imprégnation chimique, il est probable que non seulement l'absorption de la liqueur par le matériel soit facilitée, mais les chemins de diffusion sont rendus probablement plus courts. En conclusion, il est possible que l'enlèvement complet de la lamelle mitoyenne composée et de la lamelle de transition dans l'étape de raffinage soit facilité par une telle action. Le taux et l'uniformité de la mise en pâte dépendent encore de la teneur en humidité, de la taille des copeaux de bois et des divers types de prétraitement pour la pénétration. Les fissures des matériaux secs favorisent la pénétration de liqueur tandis que la sécheresse des matériaux défavorise la diffusion des produits

chimiques [28]. Pour des bois à faible teneur en humidité, la pénétration du calcium a été empêchée par la précipitation des sels de calcium sur les éléments structuraux du bois. Donc, les produits chimiques se diffusent favorablement dans le bois saturé d'eau. La charge de NaOH et de H₂O₂ dans le pré-traitement chimique représente le facteur principal affectant la qualité de la pâte [99]. En outre, le rapport du NaOH sur le H₂O₂ et la distribution des produits chimiques dans l'étape d'imprégnation ont également affecté la qualité de la pâte.

2.4.3.2.2 Techniques pour l'étude de la pénétration et de la diffusion

Les techniques montrées au tableau 2-6 ont été utilisées pour la mesure de la pénétrabilité du bois. Une technique tente de détecter la profondeur de pénétration en employant différents réactifs pour produire une coloration [100, 101, 102]. Selon cette technique, l'échantillon de bois imprégné est tranché dans la direction longitudinale et la surface de coupe montre le changement de couleur, indiquant la profondeur de pénétration pendant un temps donné d'imprégnation. La couleur foncée d'alcali se produit naturellement dans l'échantillon de bois imprégné avec une liqueur d'hydroxyde de sodium. Cette méthode est simple, elle donne des résultats observables et qualitatifs. Cependant, si les molécules de colorant sont trop grandes leur pénétrabilité dans le bois sera abaissée.

Une autre technique, extensivement utilisée, consiste à mesurer le débit d'eau ou d'air à travers un échantillon de bois sous une différence de pression entre l'entrée et la sortie du fluide. La perméabilité de l'échantillon est alors calculée selon la loi de Darcy pour des liquides. Malheureusement, l'obstacle des ouvertures de ponctuations pourrait causer des problèmes expérimentaux avec cette technique car la loi de Darcy s'applique seulement aux matières uniformes.

Tableau 2-6 Méthodes pour mesurer la perméabilité de bois

	Méthode
1	Coloration pour mesurer la profondeur de pénétration
2	Mesure du débit d'eau ou d'air sous une différence de pression pour évaluer la perméabilité du bois
3	Submersion de l'échantillon de bois sec dans l'eau et mesure du temps pris par l'échantillon pour sombrer au fond pour évaluer la perméabilité de bois
4	Augmentation de poids d'un bloc imprégné directement montré par une balance à spirale de quartz pour calculer le degré de pénétration du bois

Submerger l'échantillon de bois sec dans l'eau et mesurer le temps nécessaire pour que l'échantillon sombre au fond constitue une autre méthode étudiant la pénétration des liquides dans le bois [103]. Cette méthode a des inconvénients, par exemple, le calage est influencé non seulement par la pénétration d'eau mais également par la densité du bois. Un autre inconvénient de cette méthode est qu'il est difficile d'assurer des conditions reproductibles d'évacuation et d'imprégnation.

Une technique développée utilisant une balance à spirale de quartz est appliquée pour mesurer l'augmentation du poids d'un échantillon de bois sans interruption lors de la pénétration de liquide [104, 105]. En mesurant l'augmentation du poids de l'échantillon, il est possible de calculer le taux de pénétration aussi bien que d'étudier l'effet de pré-étuvage des échantillons sur la prise d'eau. Récemment, cette technique a été utilisée largement par Malkov et al. pour étudier la pénétration des liqueurs lors de l'imprégnation complète de copeaux de bois [73, 74, 96]. Ils ont comparé l'aubier avec le duramen du pin (*Pinus sylvestris*), la longueur avec l'épaisseur, l'eau avec la liqueur de cuisson, le différentiel de pression pour différentes pressions, le pré-étuvage à différentes températures et différents temps. Ils ont constaté que la perméabilité de l'aubier est beaucoup plus élevée que celle du duramen; que la longueur a plus d'impact que l'épaisseur sur la pénétration; que la liqueur de cuisson pénètre plus difficilement que l'eau dans le bois; que la pression plus forte est plus efficace sur la pénétration initiale; que le pré-étuvage est plus efficace à une température plus élevée et pour un temps plus long. Ils [74] ont aussi modélisé la pénétration d'eau selon les principes de pénétration tels que : la force de pénétration, l'équilibre d'air dynamique, la deuxième loi de Fick pour la diffusion et la loi de Henry pour la solubilité de gaz.

Le tableau 2-7 montre les méthodes utilisées pour étudier la diffusion. Pour mesurer la diffusion des ions des produits chimiques, il est nécessaire d'utiliser des bois saturés en eau. Kazi et al. [94, 95] ont mesuré la distribution d'hydroxyde de sodium dans les blocs ou cylindre obtenue à partir de duramen de bois feuillus en fonction des conditions d'imprégnation par SPX. Puis, ils ont utilisé la deuxième loi de diffusion de Fick et le principe de mouvement thermique des molécules - l'équation d'Arrhenius pour obtenir le coefficient de diffusion dans les directions axiales et radiales. Ils ont constaté que les énergies d'activation sont 2,8 et 3,2 KJ/gmol dans les directions radiales et axiales, respectivement.

Tableau 2-7 Méthodes utilisées pour étudier la diffusion de produits chimiques

Réf	Méthode	Technique	Principal	É _a
94	Concentration de sodium dans le bloc imprégné	MEB-DES	Deuxième loi de Fick	2,8-3,2 KJ/gmol
91	Diffusion de 1 M NaOH d'un côté de bloc saturé vers l'autre côté	Conductivité	Première loi de Fick	25,3 KJ/mol
106	Diffusion de Na ⁺ vers bloc imprégné	Titrage	Relation de Newman	5,34 KJ/mol
107	Utiliser un concept (surface capillaire effective en coupe transversale- SCECT) pour étudier l'effet de structure et pH sur la diffusion			

Robertsen et Lonnberg ont utilisé un bloc de bois complètement saturé qui a été placé entre deux chambres qui sont remplies par une liqueur chimique (1M NaOH) et l'eau, respectivement [91, 92]. Ils ont étudié la diffusion de produits chimiques dans la direction radiale par le biais du changement de concentration d'ions dans la chambre d'eau par mesure du changement de conductivité. Ils ont utilisé la première loi de diffusion de Fick et ont trouvé que l'énergie d'activation est 25,3 KJ/mol. Talton et Cornell [106] ont mesuré la vitesse de diffusion des ions sodium se répandant vers et à travers une tranche de bois. Ils ont également utilisé la relation de Newman pour obtenir le coefficient de diffusion, en plus d'obtenir une valeur d'énergie d'activation (5,34 KJ/mol) selon l'équation d'Arrhenius.

Stone [107], utilise un concept de surface capillaire effective en coupe transversale (SCECT) (Effective capillary cross-section area - ECCSA) pour étudier l'effet de la structure du bois sur

la diffusion et l'effet du pH sur la diffusion du KCl dans les trois directions structurales du tremble. Le principe est basé sur la mesure de la conductivité électrique du bloc de bois imprégné comparée à celle de la solution chimique seule. Le rapport des deux conductivités donne une valeur de surface effective de capillaire en coupe transversale, qui représente l'aire des chemins disponibles pour la diffusion d'ions. La figure 2-12 montre leurs résultats [107].

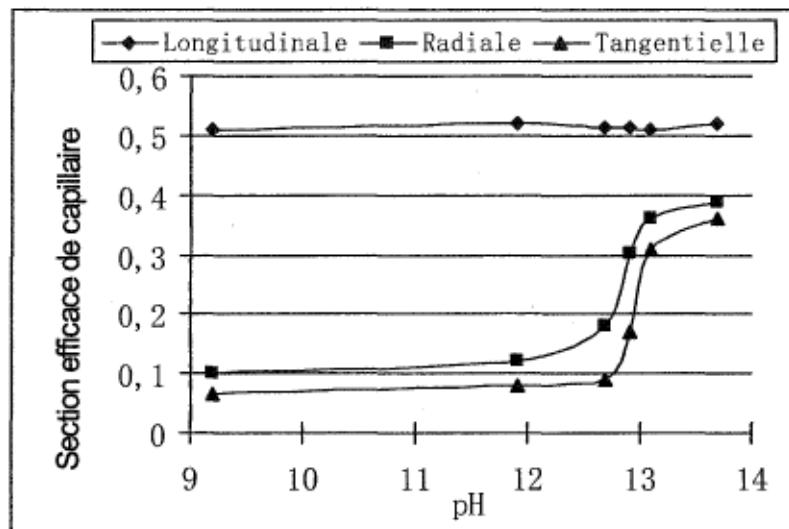


Figure 2-12 Effet du pH sur la surface capillaire efficace du tremble [107]

2.4.3.2.3 Techniques sur la distribution des produits chimiques

Les méthodes utilisées pour analyser la distribution chimique sont résumées au tableau 2-8. Les mesures se font sur une région macroscopique (dimension des copeaux) ou microscopique (ultra-structure) (parois cellulaires). Des techniques de traceur employant les isotopes radioactifs ont été employées dans des études en laboratoire pour évaluer l'imprégnation de produits chimiques dans la mise en pâte chimique et chimicomécanique. Par exemple, le soufre radioactif a été employé dans les études sur la pénétration et la diffusion de la liqueur de cuisson de sulfate dans le bois de pin et le bois de bouleau [108, 109], et une solution de sulfite de sodium dans le bois de bouleau [110]. La radioactivité bêta de la surface entière des tranches de bois imprégnées était utilisée comme indication du degré de pénétration ou de diffusion. Les éléments radioactifs tel que ^{35}S , ^{22}Na , et ^{45}Ca ont été employés dans la méthode

de radio-isotope pour mesurer la distribution des produits chimiques [111]. On a observé un taux plus élevé de pénétration dans la direction axiale des fibres. Les quantités de produits chimiques pénétrants diminuent avec le temps d'imprégnation et étaient inférieures pour le bois à haute teneur en humidité. Les quantités pénétrant pendant un temps donné dans des cubes de bois avec toutes ses surfaces accessibles étaient plus petites que la somme des quantités pénétrant séparément dans les trois directions.

Tableau 2-8 Méthodes utilisées pour analyser la distribution de produits chimiques

Méthode	Utilisation
MEB : Microscopie électronique à balayage (spécimen séché)	
MEBE : MEB environnementale	Qualitative
TT : Technique de traceur-Élément actif (ex. ^{22}Na , ^{35}S , ^{45}Ca)	Quantitative
SPX : Spectroscopie photo-électronique de rayon X	Une direction
MEB-SDE : MEB-spectrométrie de rayon X à sélection en énergie	Directions non limitées Microstructure
MET-SDE: Microscopie électronique à transmission - SDE	Ultra-structure

La spectroscopie de fluorescence de rayon-X a été aussi employée pour étudier l'effet de l'imprégnation de copeaux avec le sulfite de sodium dans la production de la pâte chimicomécanique (PCM) [112] et sur la distribution des résines [113]. Cette technique présente des limites car tracer un profil de concentration se fait dans une direction à la fois puisque la surface entière de chaque tranche est employée pour mesurer la concentration.

La microscopie électronique à balayage en combinaison avec la spectroscopie de rayon X à sélection en énergie (MEB/SDEX) a été utilisée pour déterminer la distribution de produits chimiques dans les régions morphologiques différentes du bois [94, 95, 114, 81, 115]. Par exemple, Bengtsson et al. ont analysé la distribution de produits chimiques (Na et S) dans la direction axiale du bloc ($2,5 \times 2,5 \times 30$ mm) et ont observé que la concentration de produits chimiques diminue du bord au centre de ce bloc et suivent une courbe [94, 81, 115]. La distribution de produits chimiques dans la direction radiale suit aussi une courbe, depuis la surface jusqu'au centre du bloc [81, 115].

La microscopie électronique à transmission en combinaison avec la spectroscopie de dispersion d'énergie de rayon X (MET/SDEX), une méthode modifiée de MEB/SDE, est utilisée pour analyser la distribution des produits chimiques d'imprégnation dans les parois cellulaires [28, 116]. Wallstrom et Lindberg. ont observé une différence significative dans la distribution pour des spécimens de bois sec et vert de pin suédois [28]. Le bois vert a une distribution homogène de produits chimiques dans les parois cellulaires et, au contraire, une distribution très inégale des produits chimiques d'imprégnation dans les parois cellulaires du bois séché au four.

2.4.3.2.4 Recherches sur la modélisation

La méthode numérique est utilisée largement dans la modélisation de la pénétration de liquide et la distribution de produits chimiques, lorsque la différentielle existe. Récemment, Macov et al. [74] ont largement étudié le degré de pénétration de liquide (eau) et de liqueurs chimiques dans les blocs de bois tout en étuvant l'échantillon avant de l'imprégnier. Selon le principe de la pénétration : la force de pénétration, l'équilibre d'air dynamique, et la seconde loi de Fick, ils ont utilisé la méthode numérique pour la modélisation de la pénétration du bois de pin. Ce modèle est théoriquement valable mais c'est une approche indirecte et compliquée. Costanza et Miyara ont modélisé la pénétration axiale de bois feuillu par méthode numérique d'après deux différentes forces de poussée : l'espace vide résiduelle et le gradient de pression, respectivement [117]. Mais la concordance n'est pas bonne entre les courbes réelles et celles prédites.

L'influence de la température sur le coefficient de diffusion a été modélisée [92, 95], selon l'équation d'Arrhenius [118] et les lois primaire et secondaire de Fick. Kimpe et Morin ont utilisé la méthode numérique pour étudier et modéliser la distribution de sulfite de sodium dans le bloc imprégné, selon les mécanismes de pénétration et de diffusion [119]. Cependant Kazi et al. ont modélisé la distribution d'hydroxyde de sodium par méthode numérique seulement selon le mécanisme de diffusion [94, 95].

2.4.3.3 Dimension des copeaux

Le taux et l'uniformité d'imprégnation des copeaux dans la mise en pâte dépendent non seulement de la teneur en humidité du bois mais aussi des divers types de pré-traitement réalisé pour améliorer la pénétration et de la taille des copeaux de bois. L'uniformité de la dimension des copeaux est extrêmement importante [120], particulièrement pour la mise en pâte kraft. Les copeaux ayant une dimension optimale produisent une pâte avec des caractéristiques intéressantes : un rendement élevé, peu de rejets, moins de variation de l'indice kappa et propriétés papetières améliorées [121]. Une réduction d'épaisseur des copeaux a augmenté l'uniformité de la mise en pâtes chimiques [122], mais elle a diminué les propriétés mécaniques du papier [123]. On a noté que la résistance à la rupture du papier est influencée par la longueur et l'épaisseur des copeaux tandis que la résistance à la déchirure est affectée par la longueur des copeaux [122].

Les résultats obtenus en utilisant un modèle de mise en pâte kraft indique que la vitesse d'imprégnation dépend de l'épaisseur des copeaux et de la teneur en humidité des copeaux [124]. L'importance de la diffusion pendant la mise en pâte a été illustrée dans beaucoup d'articles montrant l'effet de la taille des copeaux sur la mise en pâte chimique [125, 126] et chimicomécanique [127, 128]. Bien que les liqueurs alcalines de mise en pâte soient capables de pénétrer le bois dans toutes les directions et à un taux excédant celui des liqueurs acides de mise en pâte, il y a des dimensions maximales de copeaux au-dessus desquelles l'irrégularité de la mise en pâte devient prononcée. La bonne dimension des copeaux pour obtenir les bonnes propriétés physiques du papier varie avec la composition de la liqueur chimique [129]. C'est sa capacité de pénétration, de diffusion et de gonflement qui finalement influence l'uniformité de distribution des produits chimiques dans les copeaux.

Lonnberg et al. ont constaté qu'avec un rapport idéal de la longueur/épaisseur de 5,5:1 les diffusions radiales et longitudinales semblent égales (27-77°C) dans un pré-traitement d'alcali ou une cuisson [130]. Par ailleurs, le pressage avec une presse à vis a augmenté la prise chimique et l'enlèvement d'ions métalliques. Il a aussi diminué la dimension des copeaux tout

en rendant la teneur en humidité des copeaux plus uniforme [44] et minimisant l'effet de l'épaisseur des copeaux sur la qualité de la pâte chimicomécanique [131].

2.4.4 Effet de l'hydroxyde de sodium

Lors de l'imprégnation de copeaux de bois dans une liqueur d'hydroxyde de sodium, il se produit non seulement une pénétration de liqueur et une diffusion des produits chimiques mais également une neutralisation et un gonflement des parois cellulaires.

2.4.4.1 Gonflement

À basse température, le gonflement est plus important que la délignification et la dissolution des glucides ou des polysaccharides affaiblit les liens inter-fibres. La réaction de gonflement est presque instantanée une fois que la pénétration est complète. Cependant, l'alcali doit normalement pénétrer dans les lumens, puis diffuser vers les parois cellulaires. La pénétration de l'alcali peut être rapidement complétée mais la diffusion est limitée par la grosseur des molécules ou ions et la matrice ligueuse. Elle peut être influencée par le pH de la liqueur chimique. Les régions cristallines des chaînes cellulosiques limitent l'absorption d'eau seulement sur leurs surfaces; mais l'eau peut entrer par les régions amorphes. La structure moléculaire des hémicelluloses fournit ainsi un grand volume libre pour l'entrée des produits chimiques. Le gonflement est considérablement limité par des régions lignifiées de la lamelle mitoyenne composée. Ainsi des forces considérables se développent dans les parois des fibres, ce qui cause la rupture entre la lamelle mitoyenne composée et la paroi secondaire [8]. En gonflant le bois feuillu dans une liqueur froide alcaline, la lamelle mitoyenne augmente en épaisseur de seulement 4% et la paroi cellulaire de 8%, tandis que le lumen diminue de plus de 25%. La lignine吸ue seulement des quantités limitées d'eau, environ 2% [132].

Les polymères du bois ont différentes affinités avec l'eau, principalement dû à leurs liaisons hydrogènes et leur degré de solubilité. Le mécanisme de gonflement de la matrice ligueuse dans une solution de NaOH d'une concentration de moins de 10% est semblable à celui dans

l'eau. Le gonflement de la matrice ligneuse est limité aux régions structurales amorphes (non cristallines) et au système de pores et de vides. Habituellement, les anions hydroxyles sont connus pour être responsables de l'interaction primaire avec les groupes hydroxyles cellulaires dans les régions cristallines de la structure, alors que le cation hydraté est perçu pour être responsable du gonflement résultant [133].

Le gonflement de la cellulose dans les solutions de concentration jusqu'à 10% de NaOH, correspondant au gonflement inter-micellaire, est produit par une augmentation du nombre de pores inter-microfibrillaires de 20-100 Å en diamètre sans expansion de la taille des pores [134]. Ce mécanisme est identique à celui du gonflement dans l'eau. Le gonflement dans la solution de NaOH à 17,5% (gonflement intra-micellaire) a été provoqué par une augmentation de la taille des pores en plus d'une augmentation du nombre de pores [134]. Dans ce cas, les pores inter-microfibrillaires ont augmenté à environ 30-200 Å en diamètre, soit environ le double de ceux de l'eau dans la fibre non traitée. La pénétration du sodium de la liqueur alcaline était plus complète et plus uniforme, apparemment en raison d'un taux plus élevé de diffusion du sodium [107].

2.4.4.2 Réaction chimique et physique

L'alcali est normalement consommé dans des réactions chimiques, principalement dans la neutralisation des groupes acétiques présents dans le bois ou produits par la dégradation par clivage (peeling) des polysaccharides. Des matières extractibles polaires et acétiques ainsi que des hémicelluloses sont facilement extractibles avec les solutions alcalines à un plus grand degré que la cellulose. Donc, l'imprégnation dans une liqueur alcaline peut réduire la teneur en résines acétiques dans les pâtes chimiques, chimicomécaniques et mécaniques, car il a été démontré qu'une presse à vis peut diminuer la teneur en résines dans la pâte mécanique [5, 6, 135].

Il est ainsi imaginable que, dans le procédé de mise en pâte à la soude à froid, les réactions physiques de pénétration de la liqueur chimique (lessive) et du gonflement des fibres soient

souhaitables et devraient être facilitées par des moyens mécaniques. Par contre, les réactions chimiques, telles que la dissolution des polysaccharides et de la lignine ainsi que la décoloration de la lignine et des résines dans la pâte, devraient être évitées. Ceci signifie que la température devrait être basse et le temps aussi court que possible tout en laissant le temps requis pour la réaction du gonflement. Le noircissement typique de la pâte, causé par un traitement alcalin, se présente dans le procédé de mise en pâte à la soude à froid.

Chapitre 3 - THÉORIES ET MÉCANISMES

3.1 Écoulement dans les bois résineux

L'écoulement des fluides dans les bois résineux se produit essentiellement via les paires de ponctuations aréolées des trachéides. Les ouvertures de ponctuations, très petites en diamètre, comparées aux lumens, fournissent la majorité de la résistance à la pénétration et à l'écoulement de liquide. Par conséquent, le nombre et la condition des ouvertures de ponctuations déterminent la perméabilité.

Comstock [136] suppose que la majorité des ponctuations se trouvent sur les parois radiales près des extrémités des trachéides, comme illustré à la figure 3-1. Toutes les ouvertures de ponctuation sont présumées de tailles égales. Chaque trachéide partage quatre paires de ponctuations avec les trachéides voisines et chaque paire de ponctuations est partagée entre deux trachéides. Par conséquent, il y a deux paires de ponctuations par trachéide. L'écoulement de liquide est dominant dans la direction axiale d'un lumen à l'autre par des ponctuations. Cependant l'écoulement de liquide dans la direction tangentielle est négligeable.

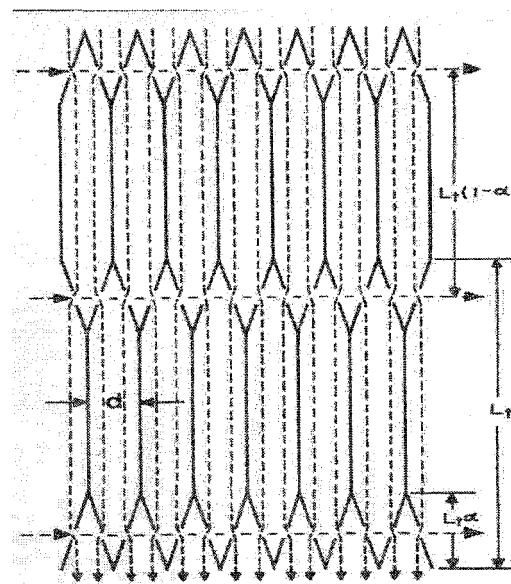


Figure 3-1 Modèle d'écoulement de liquide dans le bois résineux.
 d (diamètre de fibre), L_t (longueur de fibre), α (proportion d'une extrémité par rapport à la longueur de fibre) [136]

3.2 Mécanisme de compression des copeaux

Selon que le mouvement de compression soit continu ou cyclique, deux grands types de traitement mécanique existent. Ce sont les compressions dynamique et statique.

3.2.1 Compression dynamique

Actuellement, la presse à vis, fonctionnant à taux de compression variable, est utilisée pour comprimer les copeaux avant l'imprégnation chimique dans la mise en pâte chimicothermomécanique et chimicomécanique. Dans ces procédés, les copeaux sont introduits dans un alimentateur à bouchon où ils subissent des forces de compression, de cisaillement et de torsion. Ces actions mécaniques se présentent dans les trois directions des fibres. D'abord, ces forces délaminent les copeaux en diminuant leur grosseur et leur densité. Elles augmentent le volume de vide et la surface spécifique disponible pour l'absorption de produits chimiques, et améliorent les voies de passages pour la pénétration. De plus, la combinaison des forces expulse le liquide et l'air de la matrice fibreuse, tout en créant une pression négative lors du relâchement de ces forces, ce qui favorise l'absorption (pénétration) de liquide d'imprégnation. Sans doute, la presse à vis [45, 137] peut provoquer de la micro-compression des fibres et possiblement briser des fibres lorsque la force utilisée devient trop grande.

3.2.2 Compression statique (compression radiale)

La compression statique en direction radiale des fibres [45], un procédé de densification, crée principalement des micro et macro-fissures entre des fibres voisines, une délamination des parois cellulaires et peu de séparation des fibres. L'impact de la presse sur les parois cellulaires des trachéides pendant le processus de compression radiale est bien analysé [58]. Étant donné que la force compressive est appliquée perpendiculairement aux grains et parallèlement à la surface radiale des fibres, les parois radiales soutiennent la majeure partie de l'effort jusqu'à ce que la fibre soit complètement effondrée. Lorsque les grandes

concentrations d'effort se produisent, les parois radiales sont forcées au flambage (vers l'un des deux lumens) [138] et entraînent des dislocations entre les couches des parois des cellules ou des lamelles mitoyennes. On s'attend également à ce que la dislocation soit prédominante aux coins des cellules quand elles ont été aplatis, créant un effort de tension/compression. On s'attend également à ce que les points de la courbe des parois radiales éprouvent un effort de cisaillement élevé.

Lorsque le bois est comprimé à grande déformation (figure 3-2) il manifeste au départ une déformation élastique linéaire (A), ensuite une déformation plastique et finalement un plateau d'effort (B) quand la force de compression augmente graduellement [57]. À ce point, l'effort demeure presque constant tandis que la déformation augmente considérablement, en raison de l'aplatissement des fibres de bois de printemps. Après ce long plateau, les parois des cellules du bois de printemps sont complètement écrasées et la contrainte augmente brusquement; c'est la zone de densification (C).

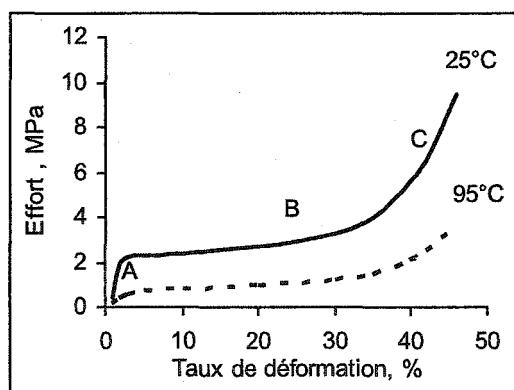


Figure 3-2 Courbes de force d'effort en fonction du déplacement (taux de déformation) lors de la compression [57]

Après le relâchement de la force, une contrainte résiduelle peut être observée. Une partie de cette contrainte résiduelle peut être récupérée par un trempage/mouillage et un traitement thermique, tandis que l'autre partie, qui est définie comme véritable contrainte plastique, correspond aux changements structuraux et est irréversible.

3.3 Hystérésis et aspiration des ponctuations

3.3.1 Hystérésis

Plusieurs explications ont été avancées pour expliquer l'hystérésis ou la perte d'hygroscopicité du bois résultant du séchage (figure 2-10). La cause la plus généralement admise est que l'hystérésis est due aux changements des forces secondaires de valence par lesquelles les molécules d'eau sont liées aux groupes hydroxyles [26].

Quand le bois est vert, tous les groupements OH qui peuvent se lier à des molécules d'eau sont satisfaits. Lors du séchage, des molécules d'eau sont expulsées et des liens voisins sont resserrés plus étroitement ensembles par le rétrécissement; finalement la liaison directe entre les molécules de la substance du bois a lieu. Plusieurs de ces liens sont si forts qu'ils ne peuvent pas être brisés plus tard même si le bois absorbe à nouveau de l'eau. Par conséquent, moins de points sont maintenant disponibles pour établir des liaisons avec l'eau qu'il en existait quand le bois était vert. C'est pour cette raison que la courbe d'adsorption indique une teneur d'humidité d'équilibre inférieure pour le bois séché relativement à la courbe correspondante de désorption.

3.3.2 Aspiration des ponctuations

Il y a aspiration des ponctuations quand le tore, au centre de la membrane de la ponctuation, s'incline complètement sur les lèvres d'un orifice de ponctuation aréolée, en formant une ponctuation aspirée avec son orifice fermé [9, 11]. La ponctuation aspirée peut réduire la perméabilité du bois et ainsi augmenter la difficulté d'imprégnation du liquide. L'aspiration des ponctuations se produit souvent dans le bois de printemps au cours du séchage du bois humide, à cause de leurs membranes de ponctuations aréolées moins rigides et plus flexibles. C'est la grande tension capillaire formée pendant l'évaporation d'eau qui est la cause de l'aspiration des ponctuations des trachéides. La capillarité fournit une source suffisante et

satisfaisante de tension de surface sur le liquide, ce qui cause l'aspiration des ponctuations [139].

La figure 3-3 illustre le mécanisme d'aspiration des ponctuations aréolées dû à la tension capillaire, proposé par Hart et Thomas [140]. À la figure 3-3a, au début de l'enlèvement de l'eau libre, un ménisque de large rayon est formé dans l'orifice de la ponctuation. À la figure 3-3b, un ménisque annulaire se forme entre la lèvre de la ponctuation et le tore avec une tension plus grande que celle montrée à la figure 3-3a. Lorsque la cavité au-dessus de la ponctuation est vide, l'évaporation d'eau a lieu par les petites ouvertures dans la margelle (3-3c), ce qui produit une tension beaucoup plus élevée qui est capable de forcer la membrane vers le lumen rempli d'eau. Ce processus continue jusqu'à ce que la ponctuation soit aspirée, avec le tore à plat couvrant l'orifice tel qu'illustré à la figure 3-3d.

Dans certains cas, il y a de très petites ouvertures dans le tore. De telles ouvertures sont généralement invisibles, mais peuvent exister comme passages tortueux entre les microfibrilles orientées aléatoirement dans le tore semblable aux ouvertures entre les fibres d'un papier filtre. La force capillaire est plus grande parce que les ouvertures sont plus petites que celles dans la margelle. Le tore de forme concave est illustré à la figure 3-3e, et la ponctuation complètement aspirée avec le tore en forme concave à la figure 3-3f.

Les facteurs qui contribuent à l'aspiration des ponctuations dans le bois sont :

- 1) Le liquide en s'évaporant doit être capable de former les liaisons hydrogènes et doit avoir les propriétés de donner et d'accepter l'hydrogène.
- 2) Le liquide en évaporant doit gonfler le bois presque autant ou plus que l'eau.
- 3) Les ouvertures des membranes de ponctuations doivent être petites.
- 4) La relation de la tension de surface et de l'angle de contact doit être telle que la force capillaire initiale soit suffisante pour causer le déplacement de la membrane de ponctuation.

La membrane de la ponctuation doit avoir une rigidité faible. Le bois de printemps dans certaines familles (*Pinaceae et Sciadopityaceae*) de bois résineux a cette caractéristique.

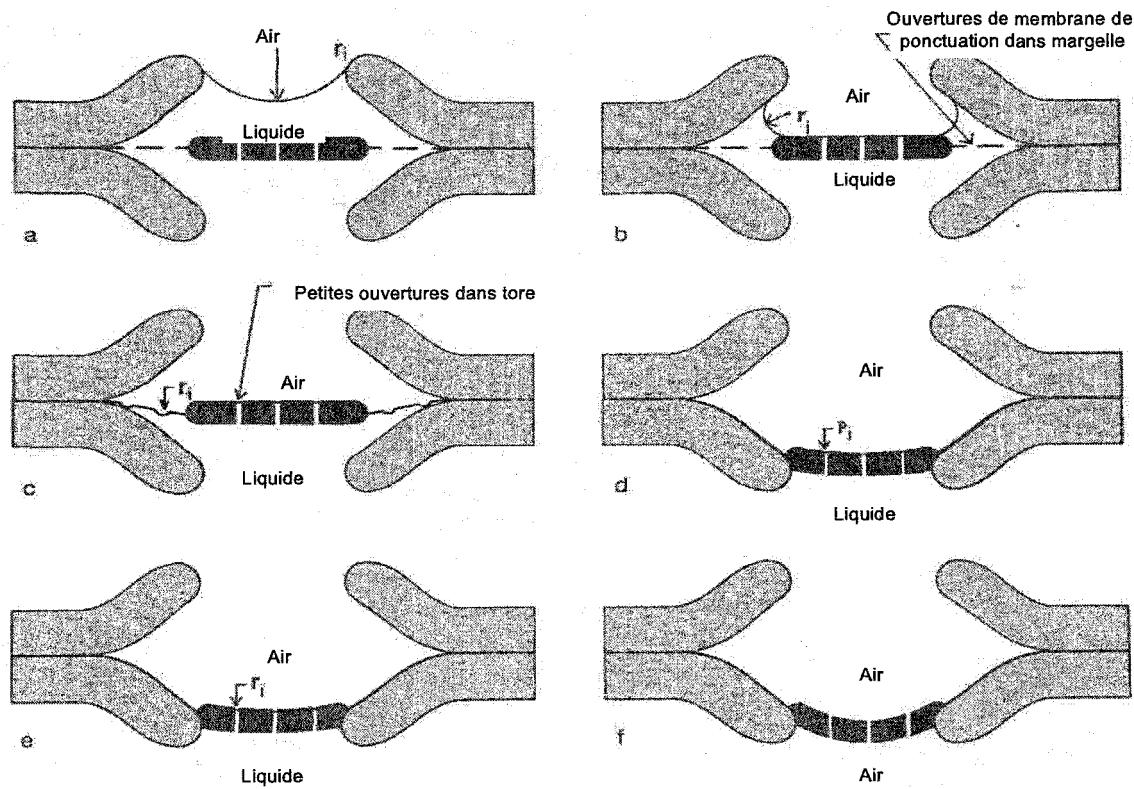


Figure 3-3 Mécanisme d'aspiration des ponctuations aréolées dû à la tension capillaire [140]

Le processus d'aspiration des ponctuations peu être renversé en étuvant la matrice ligneuse [68] ou en l'imprégnant dans l'eau pour une longue période de temps, par exemple pendant plusieurs semaines [141]. Les facteurs affectant ce relâchement sont l'hydrolyse des membranes de ponctuations dans le cas de l'étuvage et l'adsorption d'eau de nouveau (ou regonflement entre la membrane et les lèvres de la ponctuation) dans le cas de l'imprégnation dans l'eau. Le principe est l'affaiblissement de la membrane et des liens entre le tore et les lèvres de la ponctuation.

3.4 Mécanismes d'imprégnation des copeaux

Deux mécanismes se produisent pendant un procédé d'imprégnation chimique des copeaux de bois. Ce sont la pénétration et la diffusion [90]. En général, la pénétration est assez rapide sous conditions favorables tandis que la diffusion a lieu plus lentement.

3.4.1 Pénétration

Pendant l'imprégnation du bois, les éléments de vaisseaux (des feuillus), les lumens des trachéides, les ouvertures (pores) des membranes de ponctuations, et les macro- ou microfissures sont les passages principaux du liquide. L'équation de Hagen-Poiseuille [142] donne le débit d'un fluide dans un tuyau (ou un capillaire, en l'occurrence) :

$$Q = (\pi Gp g_c r^4) / (8 L \eta) \quad \text{Équation 3-1}$$

Où:

- Q = Débit dans le capillaire
- Gp = Gradient de pression entre les deux points observés
- g_c = Constante de proportionnalité
- r = Rayon du capillaire
- L = Longueur de la section de capillaire observée
- η = Viscosité du fluide

Cette équation vaut pour un seul capillaire, avec un écoulement laminaire. Comme on peut difficilement avoir un écoulement turbulent dans un capillaire, cette équation s'applique. S'il y a n capillaires dans des copeaux, on la multiplie par n . Comme le rayon est à la puissance 4, son influence est très grande. Des essences possédant des lumens de diamètres différents auront donc des degrés de pénétration différents. Cependant, cette équation est seulement applicable dans le cas de l'écoulement stable d'un liquide à travers le bois dans la direction longitudinale ou d'un autre solide poreux.

Lors du contact avec le liquide, un capillaire produit une pression négative appelée la pression capillaire. La pression capillaire est causée par la tension de surface du liquide. L'origine de la tension de surface est le déséquilibre des interactions intermoléculaires autour des molécules à la surface d'un liquide. Cependant, la pression capillaire dépend aussi de l'angle de contact et du rayon du pore. La loi de Jurins [9] décrit bien la relation entre la pression capillaire et les variables indépendantes suivantes :

$$P_c = 2\sigma \cos\theta / r \quad \text{Équation 3-2}$$

Où

- P_c = pression capillaire
- σ = tension de surface du liquide
- θ = angle de contact
- r = rayon de capillaire (pore)

Selon la loi de Jurins, la pression capillaire est inversement proportionnelle au rayon du capillaire, autrement dit plus le capillaire est fin, plus la pression capillaire est grande, plus la montée sera importante. Quand un gradient de pression est plus grand que la pression capillaire, il aide le liquide à pénétrer dans cette taille de pore plus rapidement.

En réalité, dans l'industrie papetière, l'écoulement de liquide, dans le bois ou les copeaux, est instable durant l'imprégnation. La vitesse d'absorption diminue avec le temps. Cependant, on utilise souvent une pression ou un vide, pour augmenter le gradient de pression, afin de réduire le temps de traitement (imprégnation) et ainsi atteindre une plus grande efficacité. En réalité, le gradient de pression peut être considéré comme la différence [74] entre la somme des pressions extérieures (P_{ex}), hydrostatiques (P_h), et capillaires (P_c), ainsi que de la pression partielle du mélange gazeux dans les pores du bois.

$$\Delta P = (P_{ex} + P_h + P_c) - (P_a + P_v) \quad \text{Équation 3-3}$$

Cependant, la pression partielle de l'air bloquée dans les pores des blocs change continuellement pendant l'imprégnation sous des conditions isothermes. La pénétration de liquide cause une compression du gaz et une augmentation de pression. En même temps, une réduction légère en pression a lieu dû à la dissolution de l'air dans le liquide environnant et à sa diffusion vers la surface du bloc. La pénétration de liquide est optimale dans le bois sec et

efficace sur de longues distances dans la direction des fibres. Elle n'est pas affectée par la densité du bois et la composition de la liqueur est peu importante.

3.4.2 Diffusion

La diffusion est le mouvement, sous l'influence d'un stimulus physique, d'un composant individuel dans un mélange. La cause la plus commune de la diffusion est un gradient de concentration du composant de dispersion. Le gradient de concentration tend à déplacer le composant de la haute vers la basse concentration pour détruire le gradient.

Une diffusion unidimensionnelle peut être exprimée par la première loi de la diffusion de Fick [91].

$$dm/dt = -DA (dc/dx)$$

Équation 3-4

Où

dm/dt = taux de changement de transfert de masse,

D = coefficient de diffusion,

A = surface de diffusion, et

dc/dx = rapport du changement de concentration sur la distance.

Cependant, une diffusion dans une matrice poreuse comme le bois est beaucoup plus compliquée que sous des conditions stables à travers une matrice poreuse et inerte. La deuxième loi de Fick [94] peut exprimer la diffusion dans des conditions instables (état transitoire).

$$Dc/dt = D(d^2c/dx^2)$$

Équation 3-5

Le coefficient (D) de diffusion est fonction de la température absolue.

L'équation d'Arrhenius [118] est communément utilisée pour décrire le coefficient de diffusion qui est dépendant de la température.

$$D = A_f T_K^{1/2} e^{(-E/RT_K)} \text{ ou } D = D_0 x e^{-E/(RT_K)}$$

Équation 3-6

Où

D = coefficient de diffusion,

A_f = facteur de fréquence,

- T_K = température absolue (K),
 E = énergie d'activation, J/mol et
 R = constante des gaz, $8.314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

La diffusion se produit dans toute la région chargée d'eau. Elle est optimale dans le bois saturé d'eau. Elle est efficace dans la direction perpendiculaire aux fibres. Il y a de petites différences entre les différentes espèces. La diffusion est affectée par la densité du bois, grandement affectée par la composition et la concentration (loi de Fick) de la liqueur et la température de la liqueur.

3.4.3 Gonflement

L'interaction entre la matrice ligueuse et l'eau dépend ainsi fortement de la structure supramoléculaire des spécimens en question, de la quantité d'eau déjà dans le polymère et également des facteurs qui influencent la structure de l'eau tels que la température. La distribution totale du volume de pore et de la grandeur des pores est très sensible au gonflement. En plus, les traitements de séchage de la matrice ligueuse résultent en une réduction significative et irréversible du volume de pore dû à une solidification irréversible prétendue par une cohésion serrée des éléments fibrillaires [143].

Dans la solution d'hydroxyde de sodium, l'ion sodium existe sous une forme hydratée. Donc, un cation sodium est entouré avec une coquille de molécules d'eau étroitement attirées qui empêchent les ions de se réconcilier. Les différents ions peuvent attirer un nombre différent de molécules d'eau dans une coquille d'eau; parce qu'ils peuvent avoir une force différente (densité) de leur charge. La densité de charge dépend du rapport de la charge sur la superficie d'un ion; plus le rapport est grand, plus le nombre d'ions hydratés sera grand.

Un ion sodium hydraté [144] et le degré de gonflement de la cellulose en fonction de la concentration de NaOH [133, 143] sont illustrés aux figures 3-4a et 3-4b, respectivement. Le gonflement de la matrice ligueuse (cellulose + hémicelluloses + lignine) en solution aqueuse de NaOH dépend du degré d'hydratation des ions sodium (des monopôles d'ions Na et OH) et

le nombre d'ions sodium hydratés. Le degré d'hydratation diminue donc avec l'augmentation de la concentration pour des concentrations relativement élevées. Bien sûr, le nombre d'ions sodium hydratés dépend de la concentration d'hydroxyde de sodium. C'est le volume total des ions sodium hydratés qui contrôle le degré de gonflement. Le volume total des ions sodium hydratés est le produit du nombre d'ions sodium (concentration d'hydroxyde de sodium) et du volume d'un ion sodium hydraté. En effet, le gonflement de la cellulose native peut atteindre un maximum à une concentration de NaOH entre 15 et 20% par poids.

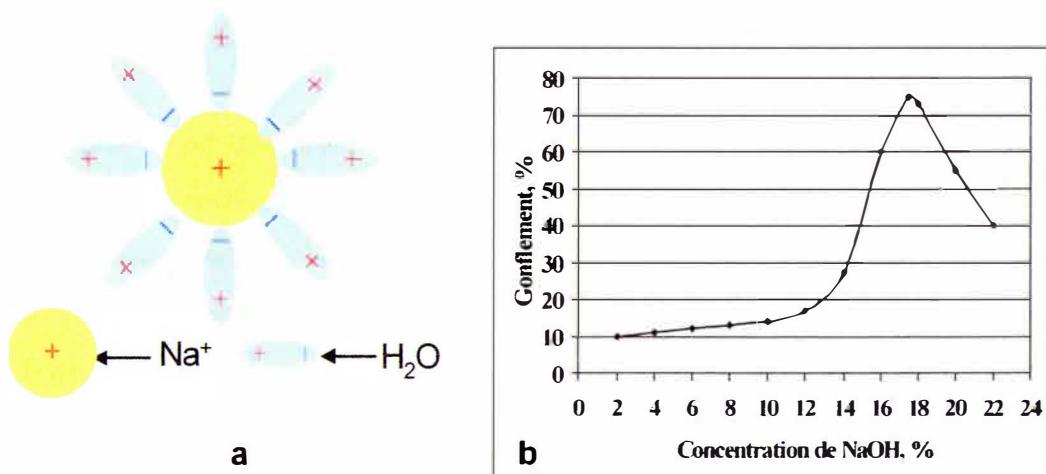


Figure 3-4 (a) Ion sodium hydraté [144]; (b) Degré de gonflement de la cellulose en fonction de la concentration de NaOH [133]

Chapitre 4 - EXPÉRIMENTATION

Ce chapitre décrit les méthodes expérimentales et les processus utilisés pour l'imprégnation d'eau et de liqueur chimique (NaOH à 3%).

4.1 Expérimentation sur l'imprégnation

4.1.1 Préparation des spécimens

Matériels

Deux arbres de pin gris (*Pinus banksiana Lamb.*) de 38 ans sont utilisés comme matière première pour l'expérimentation dans cette thèse. Des rondelles d'environ 6 centimètres (cm) d'épaisseur étaient sciées à hauteur de poitrine (1,3 mètres). Les rondelles étaient séchées à la température ambiante pour raison de conservation. Les spécimens d'aubier étaient préparés à partir des rondelles séchées à l'air, en excluant le bois de réaction et autres défauts naturels.

Échantillons

Les spécimens (blocs) utilisés dans le processus d'imprégnation sont préparés manuellement au moyen d'une scie à ruban. Les blocs ont été taillés à l'aide d'une ponceuse et mesurés avec une règle digitale; la précision des dimensions était contrôlée à $\pm 0,15$ mm. L'épaisseur, la longueur et la largeur des blocs représentent respectivement les directions radiale (R), longitudinale (L) et tangentielle (T). La façon de préparer les blocs est montrée à la figure 4-1. Il y a neuf différentes grosseurs de spécimens (Tableau 4-1). L'humidité de tous les spécimens était équilibrée dans une chambre à humidité contrôlée pendant 3 semaines.

Après 3 semaines, chaque spécimen était pesé et marqué. Les spécimens trop légers ou trop lourds étaient rejettés afin de maintenir un poids du bloc le plus constant possible, de façon à minimiser la variation de densité des blocs. Quelques spécimens étaient séchés au four à 105 °C durant une nuit pour mesurer l'humidité des spécimens. Ensuite, les spécimens sont imprégnés dans l'eau distillée, sous vide (produit par une pompe à l'huile) pendant environ 30

minutes. L'imprégnation d'eau des spécimens s'est poursuivie sous vide pendant 72 heures pour obtenir la saturation d'eau des blocs avant d'effectuer les tests de compression.

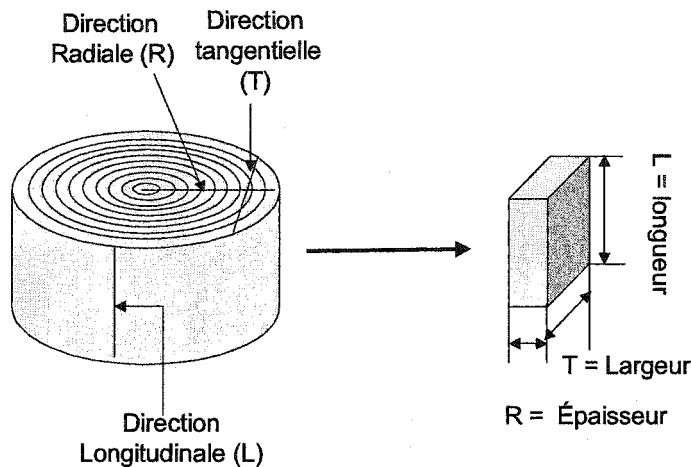


Figure 4-1 Préparation de spécimens (blocs) à partir de rondelles de pin gris.

Tableau 4-1 Dimension des neuf grossseurs de spécimen

Direction	unité	spécimens								
		#1	#2	#3	#4	#5	#6	#7	#8	#9
Radiale	mm	6	6	14	14	4,3	15,7	10	10	10
Longitudinale	mm	15	35	15	35	25	25	10,9	39,1	25
Tangentielle	mm	25	25	25	25	25	25	25	25	25

4.1.2 Compression

Deux sortes de traitement mécanique étaient utilisées dans cette thèse, soit la compression statique en direction radiale perpendiculaire aux grains de bois et la compression dynamique à l'aide d'une presse à vis de l'unité pilote de raffinage Metso (Sunds Defibrator CD300). Dans le cas de la compression dynamique, un rapport de compression de 2:1 a été utilisé.

4.1.2.1 Compression radiale statique

Dans cette expérimentation, une presse hydraulique (Model 944250, Dake Corporation, USA) a été utilisée pour réaliser la compression statique. Deux spécimens saturés en eau, placés un à côté de l'autre entre deux plaques d'acier inoxydable (30x30 cm), étaient comprimés ensemble, sans contrainte, dans la direction radiale de l'anneau de croissance et perpendiculaire aux grains du bois. Le taux de compression était contrôlé en mettant deux cales d'épaisseur prédéterminée entre les deux plateaux de la presse. Lors d'une compression, des buvards étaient placés aux côtés des spécimens pour éviter la réabsorption d'eau pendant le relâchement de la pression. La compression radiale et la presse hydraulique utilisée sont illustrées aux figures 4-2a et 2b, respectivement.

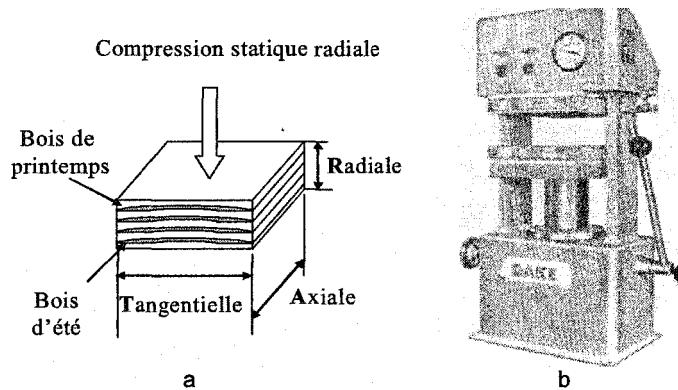


Figure 4-2 (a) Compression radiale et (b) une presse hydraulique «DAKE».

La presse était opérée manuellement et la pression était progressivement augmentée. Lorsque deux plaques d'acier inoxydable touchent les cales et que l'indicateur de pression monte brusquement, l'opération est arrêtée et la pression maintenue durant 30s. Les taux de compression prédéterminés sont de 34%, 68% et 85% de l'épaisseur initiale des blocs. Il est estimé que, de cette façon, la déformation totale pouvait atteindre environ de 65 à 70% de celle d'une compression avec contrainte, d'après la densité du pin gris. L'ensemble des spécimens comprimés au même taux était pesé après compression pour mesurer l'humidité.

4.1.2.2 Compression dynamique (Presse à vis)

Les spécimens requis pour cette partie de l'étude ont reçu un traitement dans la presse à vis (taux de compression 2:1, v/v) de l'unité pilote (CD-300, Metso Corporation) au laboratoire du CIPP. Avant le pressage, tous les échantillons (blocs) ont été saturés et mélangés avec des copeaux industriels. Le mélange a été étuvé à la vapeur sous pression atmosphérique pendant dix minutes. Après la compression, les différents échantillons ont été séparés manuellement selon l'épaisseur et la longueur initiales. L'humidité des blocs comprimés a été ajustée aussi à 39% basé sur le bois sec absolu.

4.1.3 Processus d'imprégnation

Dans cette partie seront décrits les conditions de traitement des spécimens avant imprégnation, le système et le processus d'imprégnation.

4.1.3.1 Conditions de traitement des spécimens avant l'imprégnation

Optimisation du temps du dégazage pour l'imprégnation d'eau

Les échantillons de bois de pin gris utilisés dans cette étude mesurent $10 \times 25 \times 25 \pm 0,15$ mm (sens radial \times longitudinal \times tangentiel). Ils étaient classés en trois groupes selon leur densité, soit 0,39-0,40 g/cm³, 0,43-0,45 g/cm³, et 0,46-0,47 g/cm³. Chaque groupe contient trois blocs d'essai. Ces blocs ont été saturés et comprimés dans le sens radial à 34, 68 et 85% de déformation en épaisseur radiale.

Les spécimens avant l'imprégnation d'eau sont aux conditions de traitement requis par le plan d'expérimentation de dégazage telles que résumées au tableau 4-2.

Tableau 4-2 Spécimens utilisés pour les essais de dégazage et d'imprégnation d'eau

Spécimens	Historique des spécimens					Utilisation	
	Taux de Compression %	Ajustement d'humidité			Temps d'équilibre, jours		
		Temps avant (H)	T, °C	Humidité %			
#9	0	0	22	De 150 à 39	2	*OTD	
	34	0	22	De 75 à 39	2		
	34	0	50	De 75 à 39	2		
	34	Sans ajustement			0	*OTD et **OPIE	
	68	Sans ajustement			0		
	85	Sans ajustement			0		

*OTD – utilisés pour optimiser le temps du dégazage sous la pression relative de 610 mm Hg

**OPIE – utilisés pour optimiser le processus d'imprégnation d'eau

Les spécimens sans compression étaient séchés à l'air (22 °C) pour réduire l'humidité d'environ 150% à 39%, pour servir de témoins. L'humidité des blocs utilisés dans notre expérience est définie comme le rapport du poids d'eau contenu dans les spécimens sur le poids du spécimen sec. Pour les spécimens comprimés à 34%, l'humidité a été abaissée à 39% en les séchant à l'air à 22 °C sans arrêt après la compression. Le séchage pourrait avoir des influences sur la capacité d'absorption d'eau du bois traité. Afin de mieux comprendre cet effet non désiré possible nous avons séché une partie des spécimens comprimés à 34% à 50 °C pour obtenir une humidité de 39%. Avec cette dernière méthode, les spécimens étaient d'abord mis dans un sac plastique scellé et submergé dans l'eau chaude (50 °C). Après 15 minutes de chauffage, le sac était ouvert pour laisser échapper la vapeur d'eau. Après le refroidissement des blocs à température ambiante, le processus était répété jusqu'à ce qu'ils aient atteint une humidité de 39%. Tous les spécimens ajustés en humidité étaient gardés dans un sac plastique scellé durant 2 jours, pour obtenir une humidité uniforme dans les blocs entiers. Une partie des spécimens comprimés était utilisée directement après la compression (à 34%, 68% et 85% de déformation) sans ajustement d'humidité.

Imprégnation de la liqueur (NaOH à 3%)

L'humidité des spécimens (comprimés ou non) utilisés dans l'imprégnation chimique a été ajustée à 39%. Après l'ajustement d'humidité, tous les spécimens ont été mis dans un petit sac plastique scellé pour équilibrer l'humidité pendant 21 jours. Avant l'imprégnation, les

spécimens sont réchauffés avec le sac qui les contient dans un bain d'eau à la température désignée pour les essais d'imprégnation. Le chauffage a duré 20 minutes. Les conditions de traitement des spécimens utilisés dans l'expérimentation d'imprégnation dans la liqueur de NaOH à 3% sont résumées au tableau 4-3.

Tableau 4-3 Spécimens utilisés dans l'imprégnation de NaOH à 3%

Spécimens	Historique de spécimens								Utilisation	
	Compression		Ajustement d'humidité			Jour d'équilibre	Réchauffage des spécimens			
	Type	Taux	Temps	°C	Humidité		°C	Min		
#9	Compression radiale%	0	15-60 h	22	39%	21	40	20	*OCI et **OD	
		34					60			
		68					80			
#1- #9	Presse à vis	2 :1 v/v					60		**OD	

*OCI – utilisés dans les essais pour optimiser les conditions d'imprégnation chimique

**OD – utilisés dans les essais pour optimiser la dimension et la compression

4.1.3.2 Conditions expérimentales d'imprégnation

Dégazage et imprégnation d'eau

Les conditions expérimentales résumées aux tableaux 4-4 et 4-5 sont utilisées pour optimiser le temps d'imprégnation d'eau et le processus d'imprégnation, respectivement. Les résultats sont analysés et discutés au chapitre 6. Les résultats avec l'optimisation du temps du dégazage (sous vide 610 mm Hg) sont présentés à l'annexe I, tandis que les conditions expérimentales et les résultats expérimentaux sont présentés à l'annexe II.

Tableau 4-4 Conditions de dégazage de l'imprégnation d'eau

Variables	Unité	Niveau			
Dimension de spécimen	mm	10×25×25 (#9)			
Compression radiale	%	0	34	68	85
Ajustement d'humidité		oui	Oui/non	non	non
Humidité moyenne	%	39	39/75	45	36
Temps pour équilibrer l'humidité	heure	48	48/0	0	0
Dégazage sous vide	mm Hg	620			
Temps	min	1	2	5	10
Température	°C	22			
Rapport de liquide à solide	w/w	10 : 1			

Tableau 4-5 Variables et leurs niveaux pour les essais d'imprégnation d'eau

Variables	Unité	Niveau				
Dimension de spécimen	mm	10×25×25 (#9)				
Compression radiale	%	0	34	68	85	
Ajustement d'humidité		non				
Temps pour équilibrer humidité	heure	0				
Humidité moyenne	%	150	75	45	36	
Dégazage sous vide	mm Hg	200	410			620
Temps	min	1	2	5	20	60 120
Température	°C	22				
Rapport de liquide-à-solide	w/w	10 : 1				

Imprégnation dans NaOH à 3%

Les conditions d'imprégnation de la liqueur chimique (NaOH à 3%), présentées aux tableaux 4-6 et 4-7, sont utilisées pour étudier les effets des variables et de la dimension des blocs sur l'absorption de produits chimiques, respectivement. On a fait une ou deux répétitions selon la disponibilité des spécimens pour étudier l'effet de la dimension des blocs et du taux de compression radiale. Les variables, le plan d'expérience et les résultats expérimentaux sont présentés à l'annexe III pour l'absorption de NaOH à 3% et aux annexes IV et V pour l'absorption de NaOH. Les résultats sont analysés et discutés au chapitre 7.

Tableau 4-6 Variables et leurs niveaux pour les essais d'imprégnation de NaOH à 3%

Variables	Unité	Niveau					
Dimension des spécimens	mm	10×25×25 (#9)					
Compression radiale	%	0	34	68			
Humidité (après ajustement)	%		39%				
Temps pour équilibrer humidité	jours		21				
Dégazage sous vide	mm Hg	0		610			
Temps	min	1	5	20	60	120	240
Température	°C	40		60		80	
Rapport de liquide à solide	w/w		6 : 1				

Tableau 4-7 Conditions d'imprégnation des spécimens avec différentes dimensions dans NaOH à 3%

Variables	Niveau												
No. de spécimen	#1	#2	#3	#4	#5	#6	#7	#8	#9				
Traitement mécanique	Compression radiale, %						Presse à vis (v/v)						
	0	34	68				2 : 1						
Ajustement d'humidité	39%												
Temps pour équilibrer l'humidité :	30 jours												
Temps d'imprégnation	5 min					120 min							
Rapport de liquide à solide	10 : 1 (w/w)												
Dégazage	non												
Température	60 °C												

4.1.3.3 Processus d'imprégnation

Le système d'imprégnation de liquide ou de liquide est présenté à la figure 4-3. Le processus d'imprégnation consiste en plusieurs étapes. Premièrement, les spécimens à l'humidité désignée et la température désignée sont mis dans un support spécialement conçu (6 à la figure 4-3), qui peut garder les spécimens sous la surface de la liqueur d'imprégnation et faciliter la sortie des spécimens à la fin de l'imprégnation. Deuxièmement, le support et les spécimens sont placés dans un réservoir (environ 200 mL) qui est ensuite couvert avec un bouchon élastique et bien scellé. Dans le processus d'imprégnation sous vide, la pompe à l'huile est démarrée à la puissance donnée, connectée au réservoir puis fermée après une minute de dégazage (temps fixé). Troisièmement, la quantité d'eau choisie ou de liquide à la température désignée est ensuite introduite dans le réservoir sous vide. Finalement, quand le

temps d'imprégnation est expiré, les spécimens sont sortis et pesés pour déterminer la teneur en eau (l'absorption d'eau et le degré de pénétration d'eau) ou l'absorption de la liqueur. La définition de ces termes sera donnée au chapitre 6. Lors de la température élevée (de 40 à 80 °C), on doit bien suivre le procédé lors des essais pour éviter un problème d'imprécision de poids.

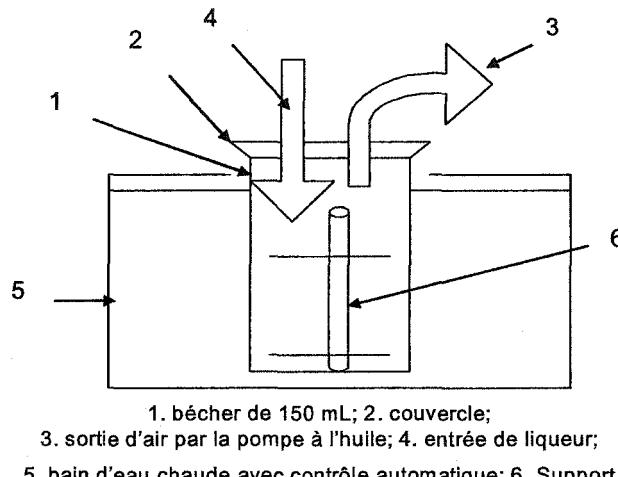


Figure 4-3 Système utilisé pour l'imprégnation

Pour l'imprégnation chimique, les spécimens imprégnés sont immédiatement congelés dans l'azote liquide. Tous les spécimens imprégnés sont séchés à froid sous vide pour éviter la diffusion secondaire des produits chimiques. Le processus d'analyse de l'absorption chimique est le suivant. La liqueur résiduelle est transférée dans un ballon volumétrique de 500 mL. Le réservoir et tous les objets sont bien lavés avec de l'eau distillée. L'eau de lavage est aussi transférée dans le ballon volumétrique. Finalement, l'eau est ajustée jusqu'à la marque du ballon volumétrique. La liqueur dans cette bouteille est bien mélangée, puis titrée avec une solution de 0,1 N HCl. L'absorption de liqueur chimique est calculée comme un rapport de l'augmentation de poids par gramme de bois sec. L'absorption chimique est exprimée comme le rapport de la consommation de produit chimique sur le poids de bois sec absolu (mg NaOH/g de bois séché au four).

4.1.3.4 Compression statique dans la liqueur chimique

Pour évaluer l'intérêt industriel du processus d'imprégnation de copeaux comprimés dans la direction radiale sous une pression de 150 mm Hg, on utilise une méthode directe dans laquelle les blocs sont comprimés et laissés dans la liqueur chimique pour leur permettre de gonfler de nouveau, ce qui est plus près de la réalité industrielle. Pour réaliser ce processus, le procédé suivant est adopté dans notre expérimentation. La compression des spécimens a été effectuée dans un réservoir cylindrique (diamètre de 20,5 et hauteur de 6,5 cm) en acier. Un piston mesurant 20 cm de diamètre et 7 cm de haut a été utilisé pour la compression. Le réservoir est muni d'un grillage, au fond, ce qui nous permet de récupérer le liquide expulsé des spécimens (figure 4-4). On emploie une presse de laboratoire « DAKE » (figure 4-2b) pour actionner le piston lors de la compression.

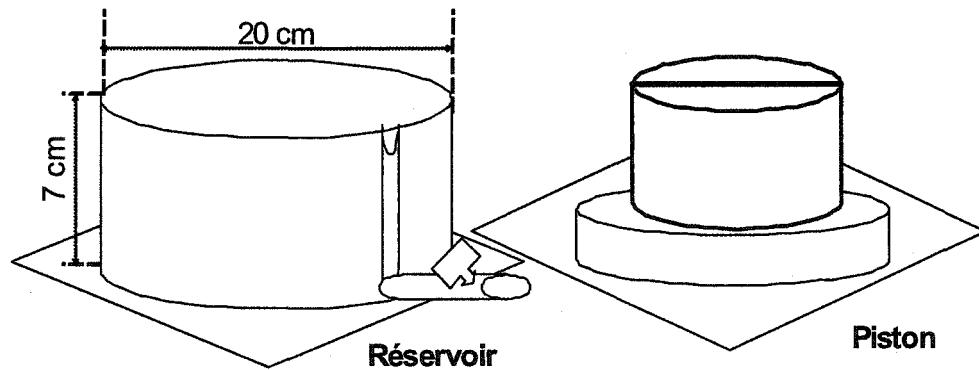


Figure 4-4 Réservoir et piston utilisés pour l'étude de la compression statique dans la liqueur chimique

Dans cet essai, quatre spécimens sont disposés en carré au centre du fond du réservoir cylindrique. Deux cales métalliques sont mises à côté des spécimens parallèlement à la direction tangentielle pour contrôler le taux de déformation. Des papiers buvards sont mis à côtés des spécimens dans la direction longitudinale pour absorber le liquide de pressage. Un piston cylindrique est posé sur ces échantillons placés au fond du réservoir cylindrique. L'ensemble du réservoir et du piston est placé sur le plateau de la presse hydraulique. La presse est opérée manuellement et la pression augmente progressivement jusqu'à ce que

l'indicateur sur la jauge augmente très rapidement. Cette pression était maintenue pendant 30 s. Les papiers buvards mouillés sont retirés, puis 400 mL de liqueur de NaOH à 3% est ajoutée dans ce réservoir. Les spécimens sont comprimés de nouveau durant 30 s avant d'être libérés de la pression. Le piston métallique est légèrement soulevé et suspendu sur le réservoir cylindrique. Ceci permet aux spécimens d'être submergés dans la liqueur. Après une minute d'imprégnation, les spécimens sont sortis du système d'imprégnation et pesés ensemble. La liqueur résiduelle et la liqueur de lavage sont transférées dans un ballon volumétrique de 2000 mL. La liqueur diluée est titrée en utilisant une solution standard de 0,1 N HCl.

4.1.4 Méthodes d'analyse

Les caractéristiques physiques des blocs et les méthodes utilisées pour étudier l'impact de la compression radiale pour la dimension #9 sont résumées au tableau 4-8.

Tableau 4-8 Réponses dépendantes étudiées - caractéristiques physiques

Propriétés	Spécimen	Taux de compression radiale, %			
		0	34	68	85
Changement de dimension	#9 10×25×25 mm	Méthodes utilisées aux sections			
Teneur en eau		4.1.4.1			
Densité de bloc		4.1.4.2			
Absorption en saturation		4.1.4.3			
MEB					

4.1.4.1 Humidité et densité

On a utilisé une règle numérique pour mesurer l'épaisseur et la largeur des spécimens, tout de suite après compression, dans le but d'étudier le changement dimensionnel. Des photos démontrant le changement en dimension des spécimens sont prises à l'aide d'une caméra numérique. Les spécimens non-comprimés étaient utilisés comme témoin. Les spécimens étaient pesés à chaque étape avec une balance. Des spécimens comprimés étaient saturés d'eau durant 3 jours avant de mesurer le poids et le volume de chacun. Le volume des échantillons était mesuré en suivant la méthode d'immersion du spécimen dans l'eau sur une balance numérique. La teneur en eau des blocs est exprimée par un rapport du poids d'eau sur le poids

de spécimen sec absolu. Dans le cas de la densité, elle est exprimée par un rapport du poids sec absolu du bloc sur le volume des spécimens saturés d'eau.

4.1.4.2 Absorption maximale d'eau

Dans cette expérimentation les spécimens étaient placés sur un support fabriqué d'un tamis en téflon et mis dans un bêcher de 150 mL. Ensuite, la pression dans le bêcher était abaissée en utilisant une pompe à eau durant 5 minutes. Puis, l'eau était introduite dans le bêcher contenant les spécimens sous vide. Une fois une quantité suffisante d'eau introduite dans le bêcher, on fermait la valve de la pompe. Après 10 minutes, le bêcher était ensuite placé dans un dessiccateur, qui a été mis sous vide pendant 48 heures. À la fin, lorsque aucune bulle d'air n'était visible, les spécimens saturés d'eau étaient pesés et leur épaisseur mesurée.

4.1.4.3 Microscopie électronique à balayage (MEB)

La MEB (JEOL, Modèle JSM-5500) est utilisée pour examiner le changement structural au niveau de la localisation des fissures. Pour cette partie de l'étude, des blocs étaient saturés d'eau avant d'être comprimés à trois niveaux (34, 68 et 85%) de déformation. Après la compression, une moitié de chacun des échantillons a été séchée à l'air, l'autre moitié a été mise dans l'eau sous vide pour obtenir une saturation complète. Puis, les échantillons séchés et saturés étaient utilisés pour préparer des échantillons pour la MEB. La MEB peut montrer la microstructure et donner plus d'informations sur les caractéristiques des fibres. Les spécimens utilisés pour l'étude microscopique (MEB) sont présentés au tableau 4-9.

Tableau 4-9 Spécimens utilisés pour MEB

Spécimen	Coupe	Taux de compression radiale, %			
		0	34	68	85
#9 10×25×25 (R×L×T)	Radiale	MEB	MEB	MEB	MEB
	Longitudinale	MEB	MEB	MEB	MEB
	Tangentielle	MEB	MEB	MEB	MEB

Une coupe transversale de 0,5 mm d'épaisseur a été préparée avec une lame de rasoir, à partir d'un échantillon saturé. Cette épaisseur nous permet de minimiser l'impact de la coupe. Chaque coupe transversale contient plusieurs cernes annuels. Des coupes radiales et tangentialles étaient préparées à partir des échantillons séchés et saturés suivant deux méthodes distinctes. Les échantillons séchés étaient tranchés par une lame de rasoir pour montrer l'information à l'intérieur des fibres (surface du lumen) et la déformation. Les échantillons saturés étaient préparés en deux étapes. D'abord, on a utilisé une lame de rasoir pour initier une coupe partielle. Ensuite, le bloc était séparé manuellement en deux parties à partir de la fissure initiale, les surfaces de séparation étudiées n'ont pas été tranchées par la lame de rasoir. Enfin, les échantillons des tranches radiales, tangentialles et transversales étaient séchés à l'air avant l'observation au microscope. Le spécimen sans traitement mécanique est utilisé comme témoin.

4.1.4.4 Distribution de sodium

Des coupes de 2,5 mm montrant les faces radiales sont tranchées dans la direction tangentielle à partir des spécimens imprégnés. Des photographies des tranches étaient prises pour exposer le degré de coloration et l'uniformité de distribution des produits chimiques à différentes profondeurs tangentialles.

Spectroscopie photoélectronique de rayon X (SPX)

La distribution d'hydroxyde de sodium dans les spécimens est analysée au moyen de la SPX (KRATOS, modèle AXIS Ultra). Les tranches au plus profond (centre) dans les directions radiale et tangentielle sont préparées pour analyser la distribution de sodium dans les trois directions. Le centre du bloc correspond au niveau le plus mauvais, en ce qui concerne la distribution du produit chimique, qui est influencée par l'absorption de la liqueur et la diffusion du produit chimique.

Principe de l'XPS

Des rayons X avec des énergies correspondant au sodium sont émis, rassemblés et montrés comme un spectre dispersif de rayon X d'énergie tel que montré à la figure 4-5. Le rayonnement de fond non différencié, nommé fond de rayonnement par freinage, est soustrait des comptes de rayon X dans la fenêtre spectrale correspondant à la crête de sodium (Énergie d'électron 1s du sodium : 1070 ev).

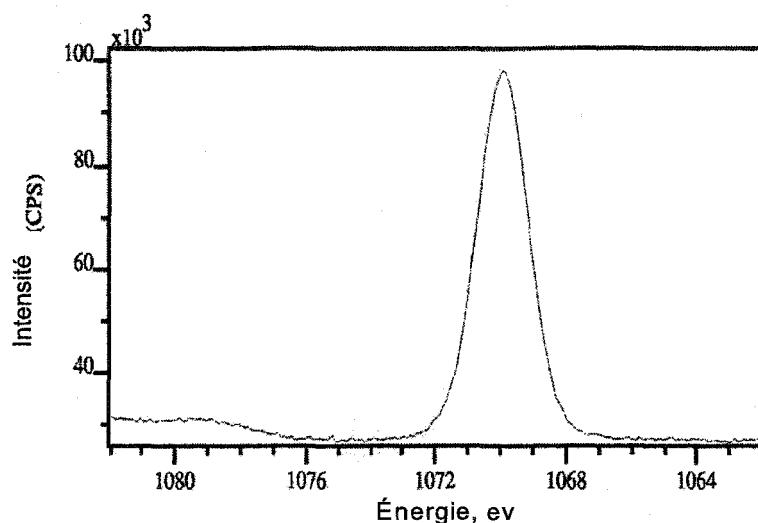


Figure 4-5 Spectre dispersif de rayon X d'énergie 1s du sodium.

Le rapport de crête au milieu (fond) (P/B) peut être calculé selon

$$P/B = (\text{intensité d'échantillon} - \text{Intensité du fond}) / \text{Intensité du fond}$$

Équation 4-1

La concentration mesurée en sodium, sur la surface transversale du bloc en contact avec la liqueur chimique, est comme maximale et se corrèle linéairement avec le rapport de P/B. La concentration relative à n'importe quel endroit donné peut alors être déterminée selon cette équation.

$$\text{Con}_{\text{location}} / \text{Con}_{\text{surface}} = (P/B_{\text{location}}) / (P/B_{\text{surface}})$$

Équation 4-2

L'intensité du rayon - X est mesurée aux différentes positions le long du bord jusqu'au centre par pas de 1 mm. Le spécimen sans imprégnation est utilisé comme témoin, car, naturellement, le bois contient un peu de sodium. La surface correspondant à la distribution de sodium dans

le bois est soustraite de chaque mesure pour obtenir la vraie valeur. L'intensité de rayon - X, maximale suivant l'une ou l'autre des trois directions dans un même échantillon est utilisée comme référence et est notée I_0 . Un rapport d'intensité I , mesurée en différentes positions dans les trois directions sur I_0 , est calculé pour chaque mesure expérimentale. Le rapport de I/I_0 peut représenter le rapport de concentration, C/C_0 .

4.2 Schéma des travaux

Pour mieux comprendre la planification de recherche conduite dans cette étude, un schéma complet est présenté à la figure 4-6 où les flèches indiquent l'ordre de ces travaux. Pour bien comprendre l'effet de la compression radiale sur les caractéristiques physiques du bois, on mesure le poids des blocs avant et après compression pour obtenir l'humidité des blocs comprimés en fonction du taux de compression radiale. On mesure également le volume des blocs avant et après compression pour obtenir la densité des blocs en fonction du taux de compression radiale. Par ailleurs, on étudie le changement microscopique des blocs en fonction du taux de compression au moyen de la MEB. L'absorption d'eau à saturation des spécimens est aussi déterminée pour voir s'il y a réduction de volume lors de faibles compressions radiales.

Pour étudier les mécanismes d'imprégnation d'eau, après les procédés d'imprégnation, le temps de dégazage basé sur la pression absolue de 150 mm Hg est d'abord optimisé, puis l'effet d'une faible compression à 34% est évalué, basé sur les spécimens témoins. Ensuite, nous avons étudié l'effet d'une compression de 34% lors du séchage sur l'absorption d'eau (aspiration de ponctuation aréolée). Lors de la dernière étape, l'effet de la compression radiale et de la puissance de dégazage sur l'absorption d'eau est étudié en suivant un plan factoriel. Les résultats sont traités au chapitre 6. Les mécanismes d'imprégnation de la liqueur chimique (NaOH à 3%) après le procédé de l'imprégnation sont étudiés en mesurant le poids des blocs. Les spécimens sont ensuite gelés dans l'azote liquide. La liqueur est titrée avec une solution de HCl à concentration connue. L'effet de diverses variables (compression radiale, puissance de dégazage, température et temps d'imprégnation) sur l'absorption de la liqueur chimique peut

être déterminé d'après l'augmentation du poids des blocs et l'absorption de NaOH. Par l'analyse des blocs imprégnés à l'aide de la SPX et de la couleur de coupe des spécimens traités, la distribution chimique est évaluée. On analyse aussi l'effet de la dimension (radiale et longitudinale) et de la compression (radiale et presse à vis) sur l'absorption des produits chimiques. Ces éléments seront discutés dans le chapitre 7.

À l'aide du *Solveur* du logiciel *Excel* de Microsoft, la modélisation est traitée sur l'absorption d'eau, l'absorption de liqueur de NaOH à 3%, et l'absorption de NaOH au chapitre 8. La modélisation (pour les modèles des équations de prédiction de l'absorption d'eau, de la pénétration de liqueur et de l'absorption chimique) est faite en se basant sur les données présentées dans les chapitres 6 et 7.

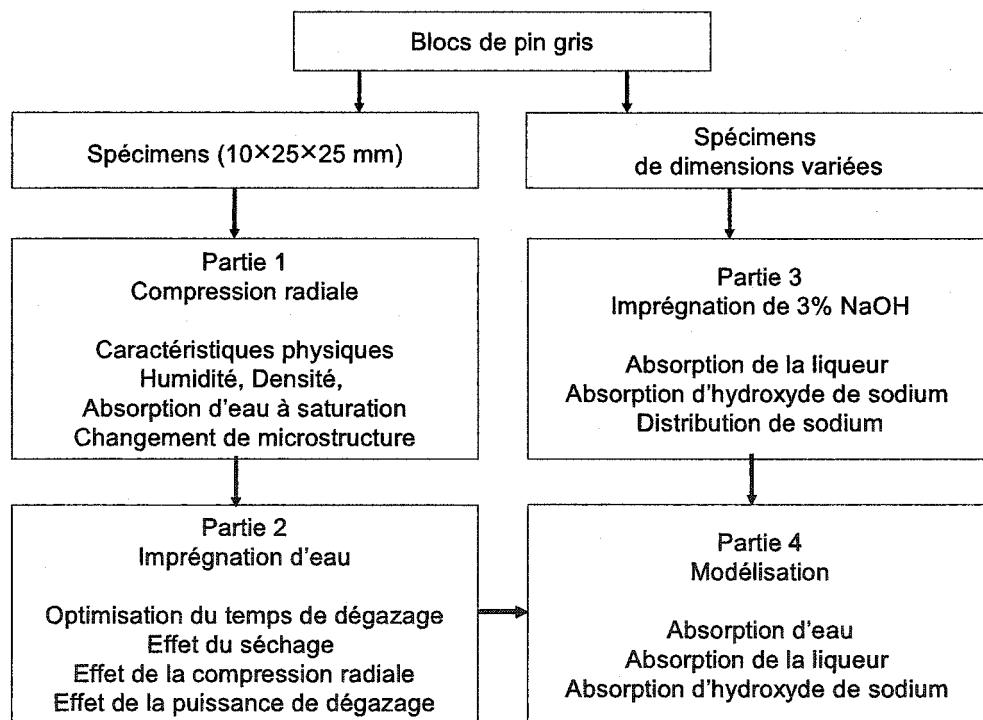


Figure 4-6 Programme de recherche suivi dans cette thèse.

Chapitre 5 - RÉSULTATS ET DISCUSSION – PARTIE I : EFFET D'UNE COMPRESSION RADIALE

Pour bien décrire le changement des macro et micro-structures, on utilise deux termes, soit, macro-fissure et micro-fissure. Basé sur ces définitions, on dit qu'une fissure qui est visible à l'œil nu est une macro-fissure; une fissure qui est invisible à l'œil nu mais visible par MEB est une micro-fissure. Une fissure est peu visible ou invisible au niveau de MEB lorsque sa taille est de moins de 1 μ m.

5.1 Effet sur le changement de dimension

L'effet de la compression radiale sur la macrostructure des spécimens est illustré à la figure 5-1 et également résumé au tableau 5-1.

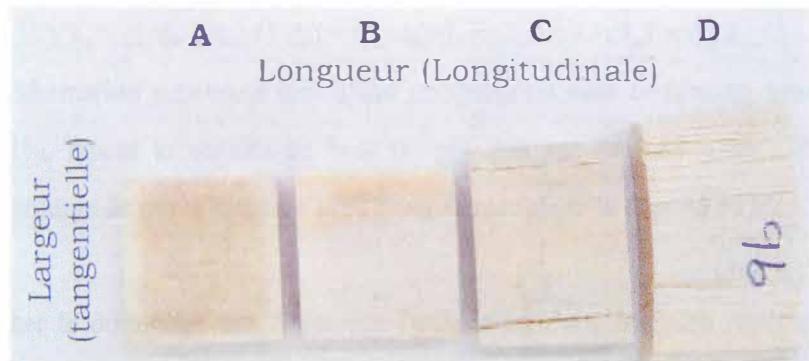


Figure 5-1 Spécimens témoins et comprimés : (A), (B), (C) et (D) respectivement pour 0, 34, 68 et 85% de compression radiale

Tableau 5-1 Changements de dimension et propriétés physiques du bois

Propriétés	compression radiale, %			
	0	34	68	85
Épaisseur comprimée, mm	10	6,6	3,2	1,5
Épaisseur originale avant compression, mm	10,3	10,5	10,3	10,8
Épaisseur après relâchement, mm	10,3	10,1	9,5	5,2
Déformation d'épaisseur après relâchement, %	0	4	9	51
Largeur après/avant compression, mm/mm	0	/	29/26	52/25
Expansion latérale après relâchement, %	0	/	12	108
Teneur en eau après compression, %	70	40	31	24

Les échantillons dénotés 34% de compression sont obtenus par une déformation à 34% de l'épaisseur originale des blocs de pin gris. Les spécimens comprimés ont dilaté lors du relâchement de la pression. Visuellement, il n'y avait pas de changement sur la forme des spécimens. En fait, ils ont regagné presque totalement leur épaisseur originale, soit 96% de cette dernière (figure 5-1B). Mais la faible diminution d'épaisseur est statistiquement significative lorsque la différence avant et après la compression radiale est comparée à l'aide du logiciel *JMP IN*. En conclusion, une basse compression de 34% produit une réduction très faible d'épaisseur après le relâchement de pression. Des études démontrent qu'une telle compression (< 34%) ne produit qu'une faible concentration de force et ne cause qu'une déformation dans le bois de printemps [145].

On connaît que la densité moyenne du bois du pin gris est de 0,43 g/cm³ (d_b) et celle des composants du bois est de 1,5 g/cm³ (d_c) [9]. Alors le rapport (V_p/V_t) du volume de pores au volume total de bloc peut être calculé comme suit :

$$V_p/V_t = (V_t - V_c)/V_t = (1/d_b - 1/d_c)/(1/d_b) = (d_c - d_b)/d_c = (1,5 - 0,43)/1,5 = 0,71$$

En théorie, la déformation maximale lors d'une compression sous contrainte dimensionnelle est d'environ 71%, quand la densité de bois du pin gris est de 0,43 g/cm³. Bien sûr, le pourcentage du volume de pores diminue avec l'augmentation de la densité du bloc.

Afin de minimiser le dommage aux fibres par l'utilisation d'une pression supérieure à cette limite (71%), on a choisi 68% comme compression moyenne pour nos essais, car sous une compression sans contrainte, la dimension tangentielle a expansé avec l'augmentation de compression. Sous une compression sans contrainte de 68%, le changement de macrostructure des blocs était clairement visible en termes de macro-fissures et de dimension des blocs tel que démontré à la figure 5-1 C. Premièrement, les macro-fissures étaient partiellement visibles sur les surfaces comprimées des blocs. La direction tangentielle du spécimen est devenue plus large et les surfaces de la coupe tangentielle étaient ridées. Le spécimen comprimé a expansé de nouveau à environ 91% de l'épaisseur originale après relâchement de la pression (Figure 5-1C).

Lors de la compression radiale, aucune contrainte sur les autres dimensions du spécimen ne fut utilisée. Un taux de 85% a été choisi comme un niveau maximal de compression dans ces essais. La figure 5-1D illustre le changement bidimensionnel des blocs. Les surfaces des spécimens comprimés à 85% avaient plus de macro-fissures que celles comprimées à 68%. Comparativement, la compression à 85% a produit plus de changement sur l'épaisseur et la largeur des blocs. Donc, on a constaté que le changement de dimension est très minime jusqu'à 34%, léger jusqu'à 68% et prononcé jusqu'à 85%.

La tendance aux changements bidimensionnels en regard des taux de compression radiale est montrée à la figure 5-2. Sous une compression faible, soit 34%, l'épaisseur et la largeur ont très peu changé. Dans ce cas, la déformation a lieu principalement dans le bois de printemps qui est viscoélastique. Après le relâchement de pression presque cent pour-cent de la déformation a disparu. Cependant, avec une compression de 68%, l'épaisseur du bloc est revenue jusqu'à environ 91% de l'épaisseur initiale soit une perte de 9%. Cette déformation permanente suggère qu'il y a une déformation des lumens des fibres, ce qui est évident visuellement sur la coupe transversale. La surface de coupe transversale du lumen variait avec la déformation du lumen ($S=a*b*\sin\theta$, a et b sont les dimensions de la fibre en coupe transversale, θ est l'angle entre a et b). Quand l'angle θ diminue, la surface de la coupe transversale du lumen diminue aussi. D'autre part, l'expansion latérale était de 12% qui est un peu plus que la diminution d'épaisseur (9%) tel que vue au tableau 5-1. Le volume du bloc après une compression de 68% a augmenté d'environ 8% (total) ($(0,91*1,12 - 1) \times 100\% > 0$) lors du relâchement de pression. L'augmentation du volume égale la différence entre l'augmentation de volume des fissures créées et la réduction de volume de lumen causée par la compression.

Quand le taux de compression était de plus de 68%, la magnitude de diminution d'épaisseur et celle de l'expansion latérale ont augmenté de façon remarquable. En comparant avec une compression de 68% ou moins, la compression à 85% a eu un effet beaucoup plus grand sur le changement de macrostructure (la création de macro-fissures et le changement bidimensionnel). Donc on arrive à la même conclusion que Salmén et Fellers [145], soit que

les déformations plastiques (au-delà de la région élastique ou au-delà du point de fatigue de compression) sont essentielles pour créer des macro et micro-fissures entre des fibres voisines. La création des micro ou macro-fissures peut faciliter la pénétration de liquide et l'augmentation de surface spécifique peut favoriser la diffusion de produits chimiques dans la matrice du bois.

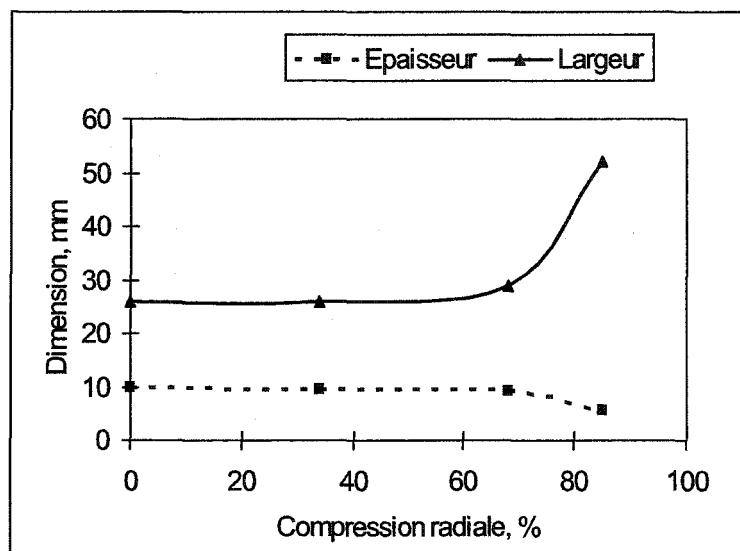


Figure 5-2 Épaisseur et largeur mesurées immédiatement après la compression radiale et avant l'imprégnation

5.2 Effet sur la teneur en eau

La figure 5-3 montre l'effet de la compression sur le changement de la teneur en eau des blocs. La teneur en eau des blocs diminue très rapidement au début de la compression, ensuite de plus en plus lentement avec l'augmentation du taux de compression radiale. Ceci est dû au fait que l'eau libre présente dans les lumens des fibres est expulsée plus facilement au début de la compression. La quantité d'eau libre diminue graduellement avec l'augmentation de la pression mécanique. Elle varie avec le taux de compression suivant une puissance négative. La diminution de la teneur en eau est importante sur la pénétrabilité du bois pendant l'imprégnation chimique.

La figure 5-4 représente l'influence de la densité du bloc sur la teneur en eau. La teneur en eau du bloc a diminué avec l'augmentation de densité au cours de la compression. En comparant les trois taux de compression, on trouve que la teneur en eau après une compression faible a varié beaucoup avec le changement de densité, tandis que sous une forte compression à 85% la densité du bloc influence très peu la teneur en eau. Donc, un taux de compression plus élevé est plus efficace pour obtenir une humidité plus uniforme, ce qui peut favoriser la qualité d'imprégnation du bois. La variation de teneur en eau en fonction de la densité et du taux de compression provient probablement de la variation de microstructure.

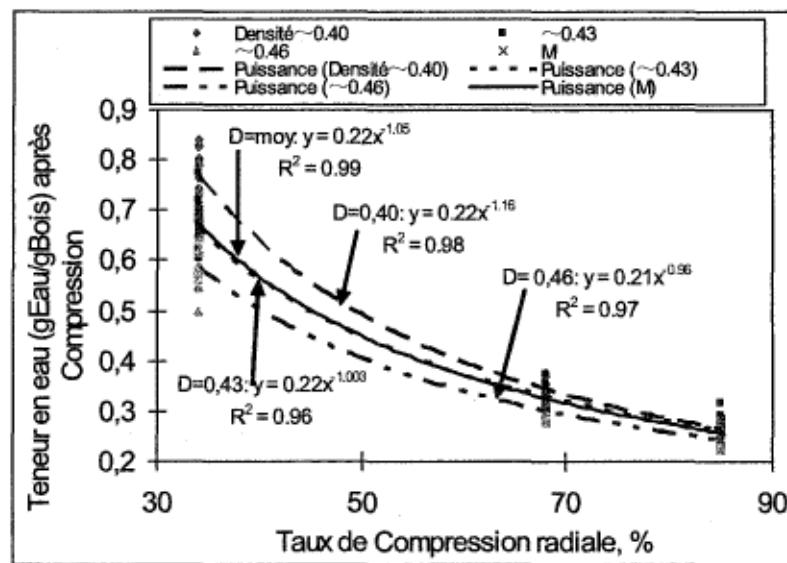


Figure 5-3 Teneur en eau du spécimen comprimé

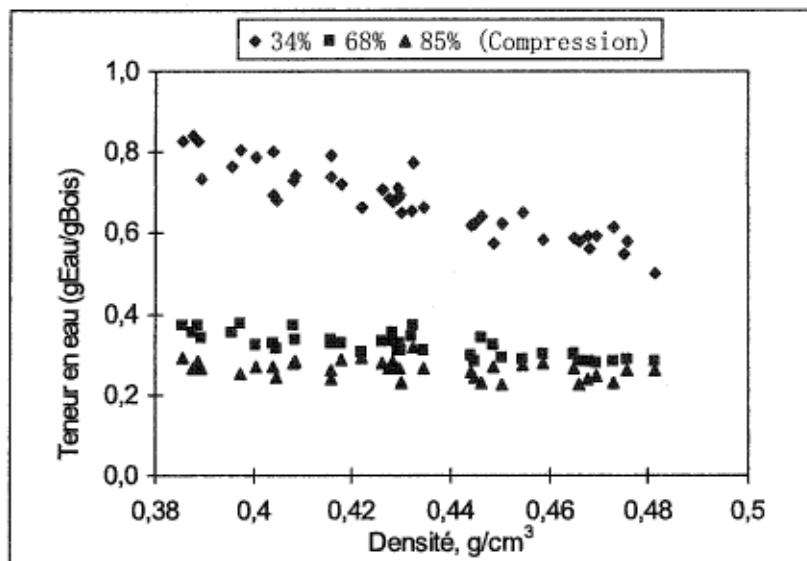


Figure 5-4 Influence de la densité sur la teneur en eau après la compression

5.3 Effet sur la densité du bloc

La compression radiale aurait changé le volume du bloc. Mais ce dernier a aussi ensuite changé avec le temps et les conditions d'humidité. Le calcul de la densité du bloc comprimé est basé sur le volume du bloc saturé d'eau. Après saturation, l'épaisseur du bloc a augmenté et la largeur était réduite à nouveau. Mais le volume du bloc a augmenté plus qu'avant le trempage dans l'eau.

La figure 5-5 montre l'effet de la compression radiale sur la densité du bloc. La densité n'a pas diminué pour une basse compression telle que moins de 34%. Au contraire, les densités des blocs ont augmenté un peu. Ceci indique qu'il existe une part de déformation relativement permanente (c'est à dire une déformation plastique illustrée à figure 3-2 étape B), qui est difficile d'éliminer par trempage dans l'eau durant 3 jours, ensuite la densité était réduite progressivement jusqu'à environ 68% de compression. Au-delà de ce taux de compression, la densité était réduite de plus en plus rapidement; elle est une fonction polynomiale du taux de compression. Donc, nos résultats indiquent qu'une basse compression, comme 34%, est la principale cause de la déformation élasto-plastique, et qu'une compression de 68%, comme dans l'étape C (figure 3-2), écrase complètement les parois cellulaires du bois de printemps

[10, 56, 57]. Bergander et Salmén [146] ont rapporté qu'une compression radiale de 50% d'un spécimen d'aubier d'épinette de Norvège ($10 \times 10 \times 20$ mm pour R, T, et L) n'a produit aucune macro-fissure parallèle (délocalisation) sur les surfaces radiales des fibres. Mais nous trouvons que la compression à 50% a réduit un peu la densité. Cette différence vient probablement de l'essence du bois, la dimension de spécimens et les conditions de compression telles que la température et la vitesse de compression, etc. Parkinson *et al.* [44] ont comparé les densités volumiques aux différents taux de compression avec une presse à vis. Ils ont constaté qu'à un taux de compression de 5:1 la densité est seulement un peu plus faible par rapport au taux de 3:1.

De la figure 5-5, on peut constater que la compression réduit la variation de densité des blocs. L'effet de réduction de la variation de densité était de plus en plus prononcée avec l'augmentation du taux de compression. Autrement dit, avant le raffinage ou l'imprégnation de produits chimiques, le prétraitement mécanique – compression radiale, améliore l'uniformité de densité des blocs. Ce phénomène est important car la compression peut favoriser l'uniformité de distribution des produits chimiques dans la matrice entière durant l'imprégnation.

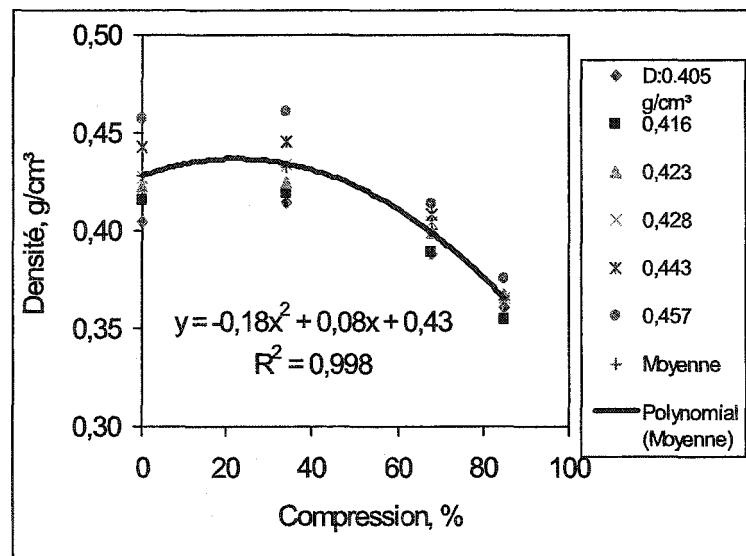


Figure 5-5 Effet de la compression sur la densité du bloc

La figure 5-6 montre le changement de densité du bloc après une compression à 85%. Avec cette haute compression, la densité du bloc a toujours diminué. Mais la diminution de densité a varié pour une même densité initiale et pour différents blocs. Dans nos essais, la plus grande variation de densité après une compression à 85% est d'environ $0,05 \text{ g/cm}^3$ pour les spécimens avec une densité initiale semblable. La non-uniformité naturelle du bois, une matière biologique et les erreurs expérimentales peuvent probablement contribuer à ces variations. Par exemple, dans nos essais, l'épaisseur des blocs était contrôlée à $10 \pm 0,15 \text{ mm}$ pour les spécimens séchés à l'air. Mais le gonflement en épaisseur des blocs a aussi varié. En tout cas, toutes ces raisons naturelles et expérimentales causent une grande variation, c'est une réalité.

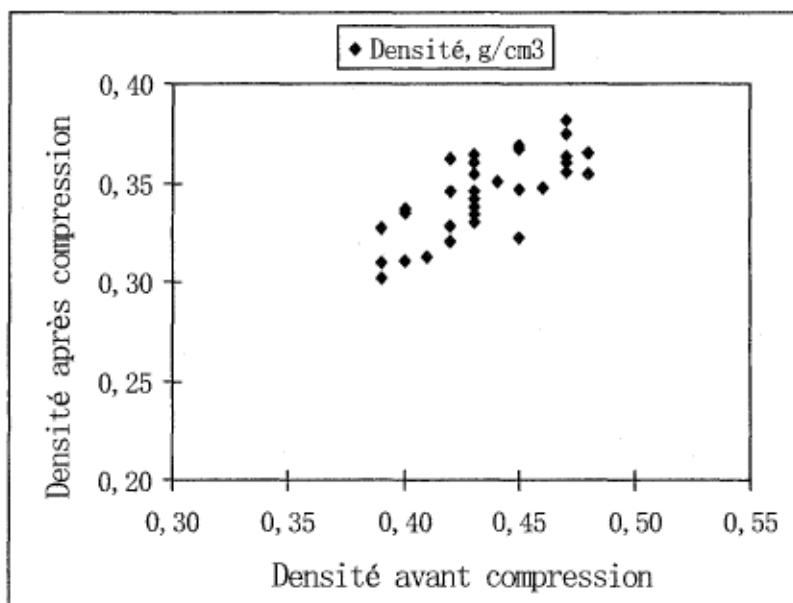


Figure 5-6 Influence de la densité des blocs sur la variation de densité après une compression à 85%

5.4 Effet sur le changement de la microstructure

Les changements morphologiques des blocs et des fibres peuvent être directement analysés par la microscopie électronique à balayage, qui fournit une méthode flexible pour voir la différence topographique des spécimens, dû à un plus fort grossissement et une grande profondeur de champs. Les figures de 5-7 à 5-9 montrent les caractéristiques de morphologie

microscopique du bois de pin gris en trois coupes typiques. Ce sont les témoins pour observer le changement de la microstructure après une compression radiale.

Il est évident que la zone de bois d'été du pin gris était très large (figure 5-7a), comme indiqué dans la littérature [18], ce qui veut dire que le rapport de bois d'été sur le bois total est probablement supérieur à 25% en volume. Une proportion élevée des fibres ayant une paroi cellulaire épaisse est une des causes de la qualité inférieure des pâtes de pin gris, car les fibres du bois d'été sont plus rigides, causant ainsi moins d'adhésion entre elles lors de la fabrication du papier. La figure 5-7b montre que le lumen de fibres de bois de printemps est beaucoup plus grand que celui des fibres de bois d'été. Elle indique également clairement que les lumens des fibres ligneuses sont les passages d'air/liquides dans la direction axiale.

La figure 5-8 montre les ponctuations aréolées qui se situent principalement au bout de la paroi radiale des fibres de printemps où elles sont plus larges et plus nombreuses que sur la paroi radiale des fibres d'été. Elles sont la seule voie dans la direction tangentielle pour communiquer avec les lumens voisins.

La figure 5-9 illustre que les rayons ligneux sont les passages dans la direction radiale. Il est remarquable qu'il n'y a pas ou très peu de ponctuations aréolées sur la surface tangentielle. Les paires de ponctuations aréolées sont bien claires entre les fibres voisines du bois de printemps. Donc, les passages dans le spécimen témoin incluent les lumens, les rayons et les ponctuations aréolées dans les directions axiale, radiale et tangentielle, respectivement. Les ponctuations sont les éléments critiques des réseaux des passages, dues à leur petite taille.

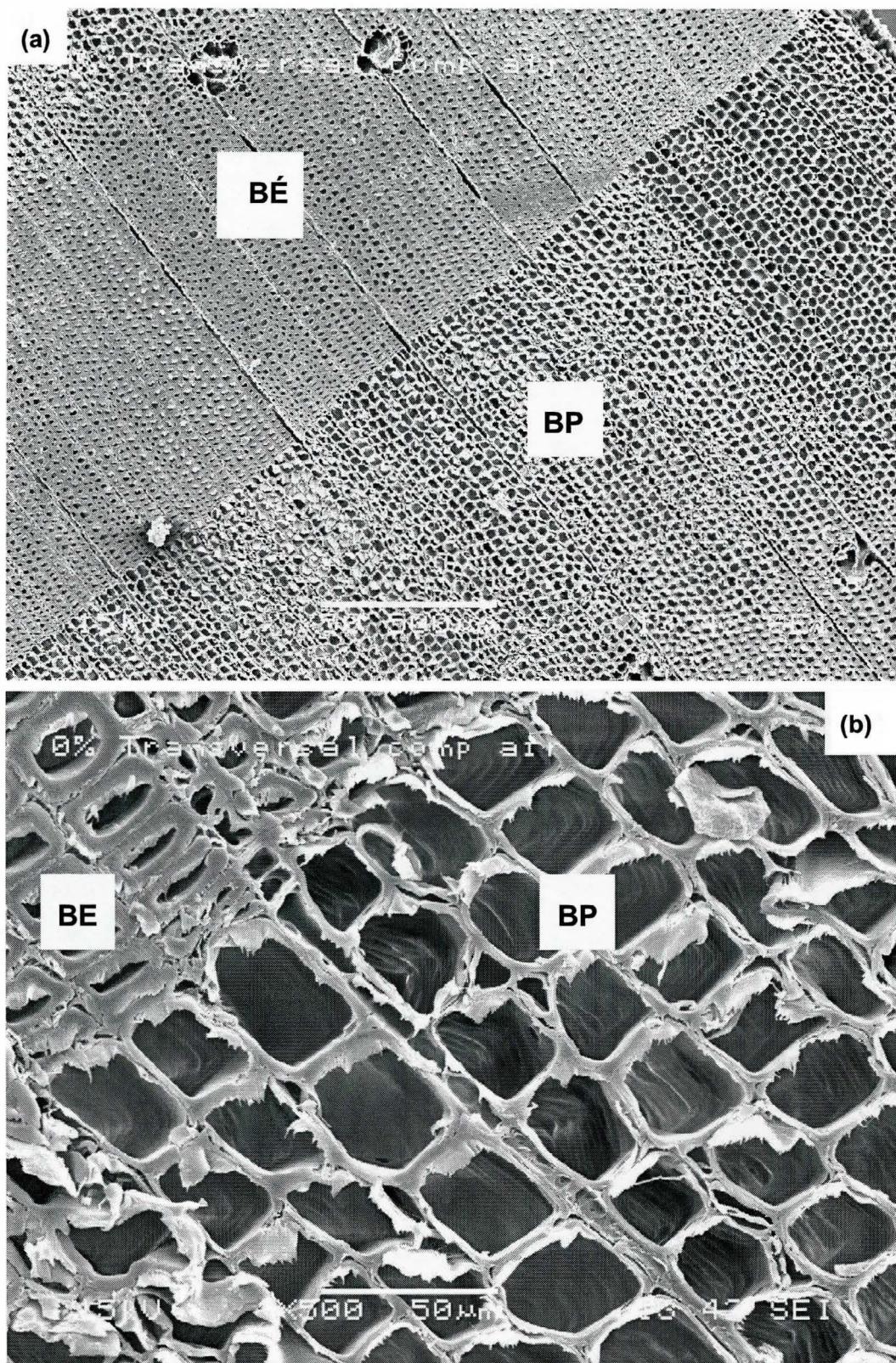


Figure 5-7 Micrographies des coupes transversales de l'échantillon témoin (BE : Bois d'été, BP : Bois de printemps)

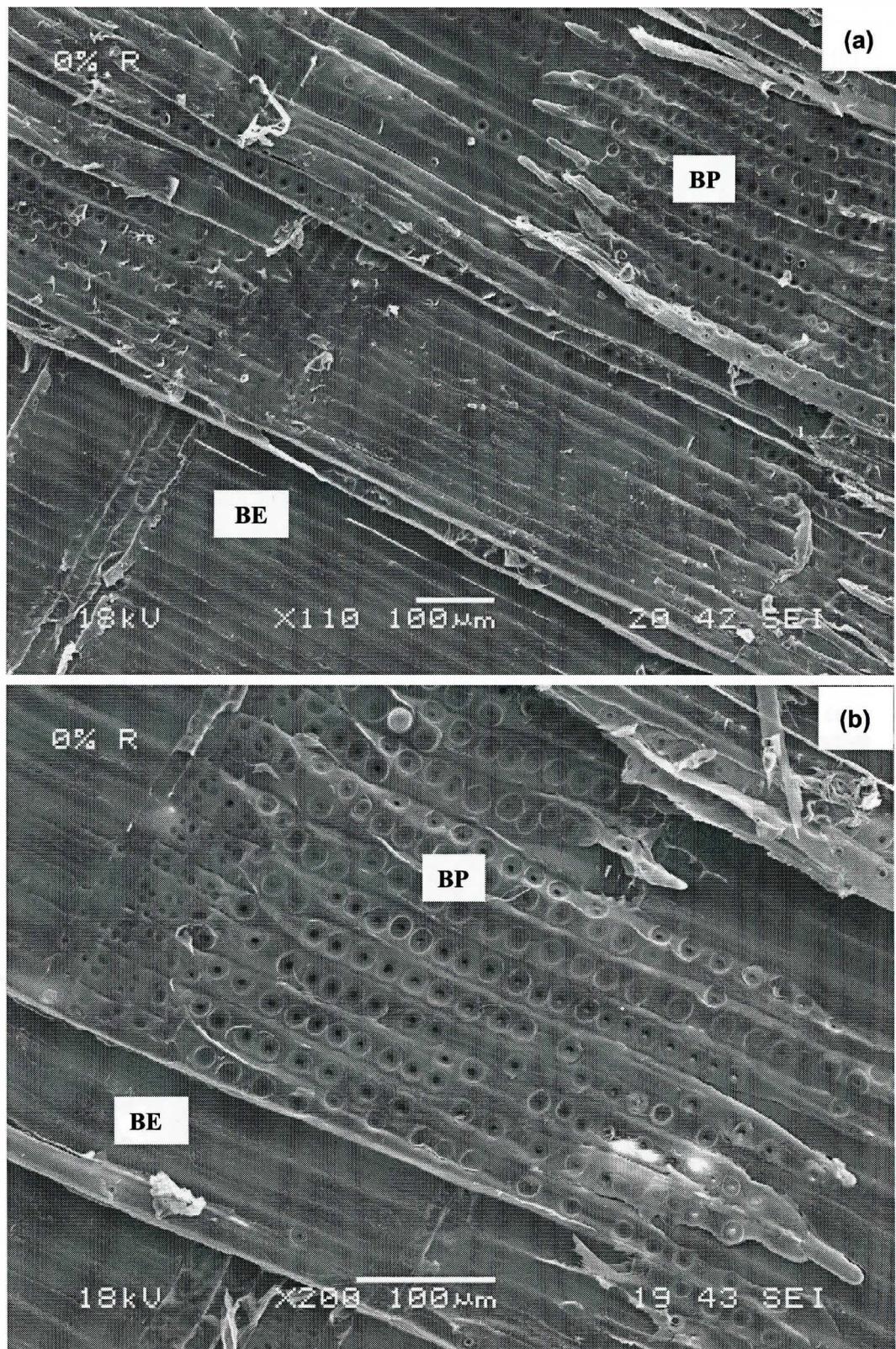


Figure 5-8 Microographies des coupes radiales de l'échantillon témoin
(BE : Bois d'été, BP : Bois de printemps)

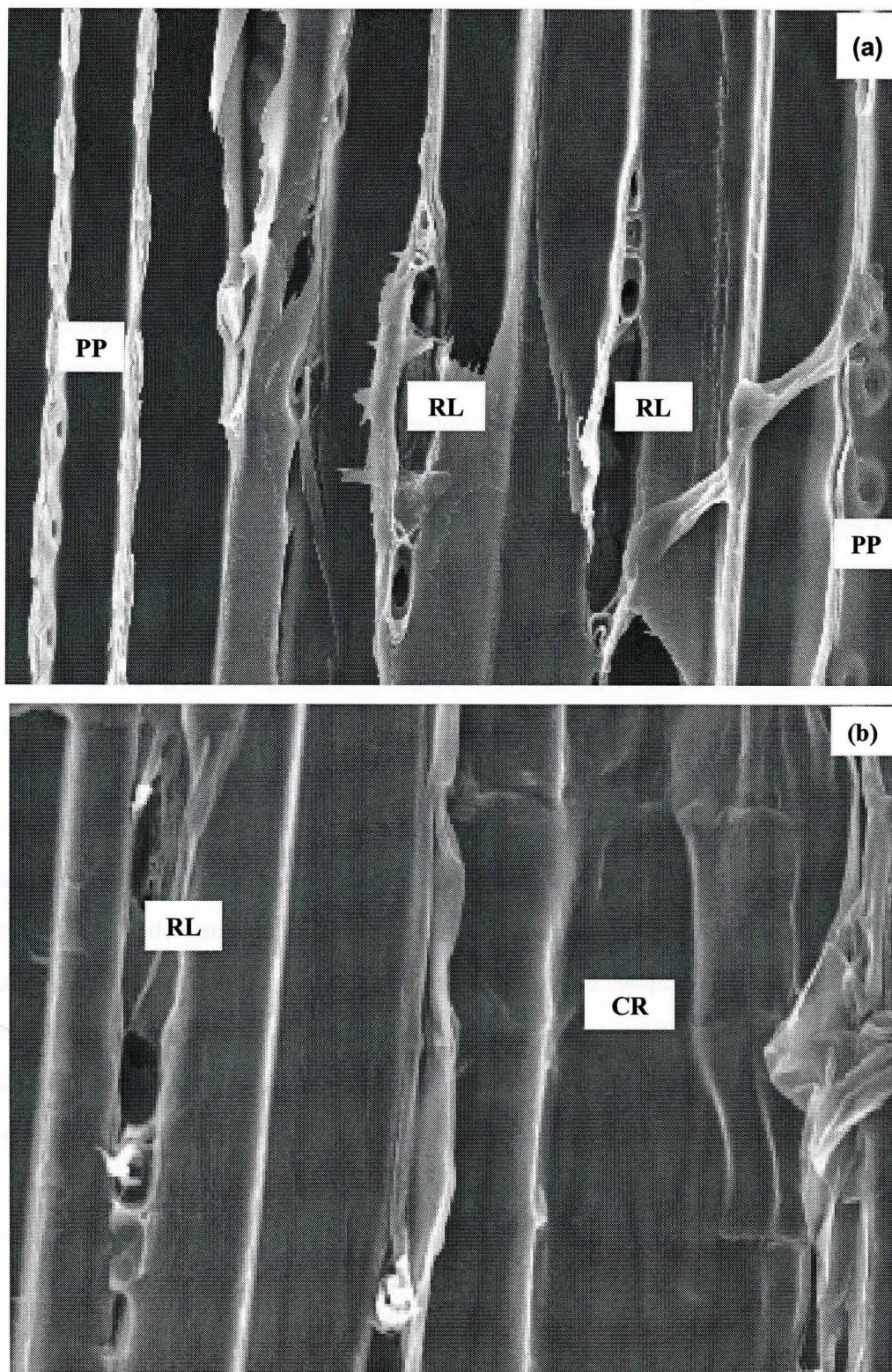


Figure 5-9 Micrographies des coupes tangentielles de l'échantillon témoin (PP : Paires de ponctuations; RL : Rayon ligneux; CR : Canal résinifère)

5.4.1 Compression à 34%

Coupe transversale

La figure 5-10 présente le changement morphologique en coupe transversale après une basse compression de 34%. On trouve qu'une faible compression de 34% (figure 5-10a) ne change généralement pas beaucoup la structure morphologique du bois (figure 5-7a). La forme des canaux résinifères est presque complètement conservée. Cependant, en augmentant le grossissement de la microphotographie montrée à la figure 5-10b, on peut voir plusieurs changements. D'abord, l'effet de compression est que les lignes de rayon sont devenues tortueuses. De plus, la forme des lumens dans le bois de printemps est changée d'une forme presque polygonale régulière à non régulière. Les parois cellulaires sont déformées et sont devenues tordues. Le changement de la forme de la paroi cellulaire est particulièrement évident dans la direction radiale, dû à la force impliquée dans cette direction. Ainsi, il existe probablement une déformation des ponctuations aréolées situées sur la paroi radiale des fibres de printemps.

À une faible compression radiale, les zones du bois de printemps sont déformées premièrement à cause de leur flexibilité. Les fibres du bois d'été, ayant une résistance mécanique à la déformation comparativement plus forte, maintiennent leur morphologie régulière. La région élastique se limite seulement au taux de compression de moins de 5%, le taux de compression plus élevé touche la région élastoplastique [57]. Donc, théoriquement, il existe une déformation ou une légère réduction en volume de lumen après 34% de compression. L'analyse par MEB supporte les conclusions présentées aux sections 5.1 et 5.3: une faible compression telle que 34% peut causer la réduction d'épaisseur du bloc et l'augmentation de densité.

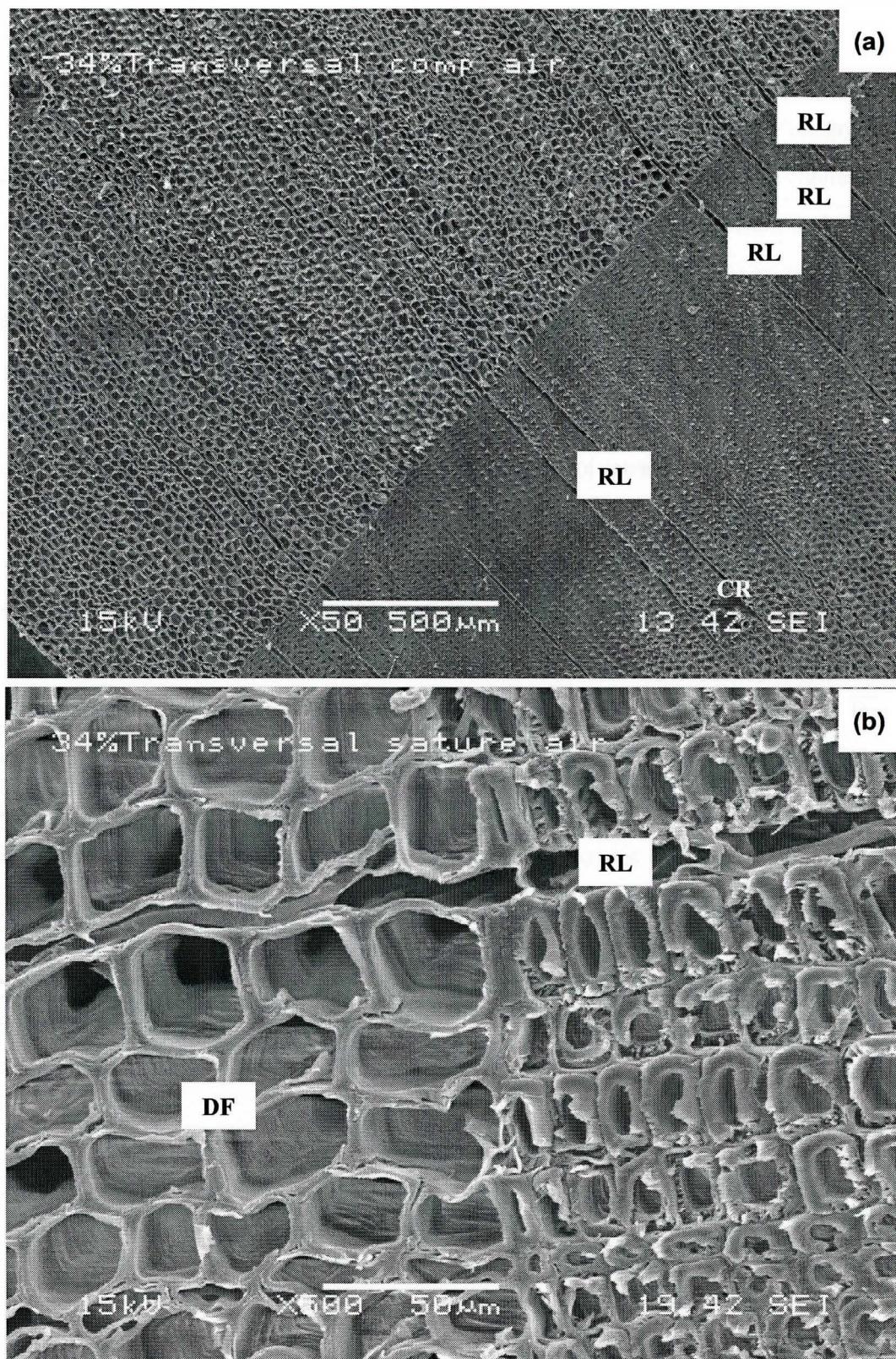


Figure 5-10 Microographies d'une coupe transversale de spécimen comprimé à 34% (CR: Canal résinifère RL: Rayon ligneux; DF: Déformation des fibres)

Coupe radiale

La figure 5-11 présente des coupes radiales d'un spécimen comprimé à 34%. La figure 5-11a est une coupe avec une lame de rasoir. Tel qu'il est illustré à la figure 5-11a, l'intégrité de la structure de bois est bien gardée. En comparant la microstructure présentée à la figure 5-8a, il semble donc que l'intégrité du bois soit semblable avant et après la compression de 34% sur la surface radiale. La figure 5-11b présente des caractéristiques détaillées de la séparation des fibres dans la direction radiale. C'est une coupe initiée avec une lame de rasoir mais la séparation a été effectuée manuellement. Elle démontre qu'après une compression de 34% la zone de faible résistance de séparation est principalement entre la couche composée (Lamelle Mitoyenne Composé - LMC) et la couche externe de la paroi secondaire (S_1). Les lignes entre des fibres voisines sont bien conservées et claires. Toutefois, on observe des espaces se trouvant aux coins des fibres voisines. Autrement dit, la compression faible de 34% a eu un peu d'effet sur la création de micro-fissures et presque pas d'effet sur la création de macro-fissures. Mais la MEB ne peut pas nous fournir l'information sur les micro-fissures plus petites que $1\mu\text{m}$. La présence des micro-fissures partout pourrait devenir évidente lors du procédé d'imprégnation chimique discuté aux sections 7.2.1 et 7.4. Également, la MEB a de la difficulté à montrer directement l'effet de la compression à 34% sur la déformation des membranes des ponctuations, car celles-ci sont protégées par les lèvres de la ponctuation ou sont détruites durant la préparation de l'échantillon. Donc, on déduit qu'une compression au taux de 34% ne peut pas significativement augmenter le volume de vide, au cours de l'imprégnation dans les liquides.

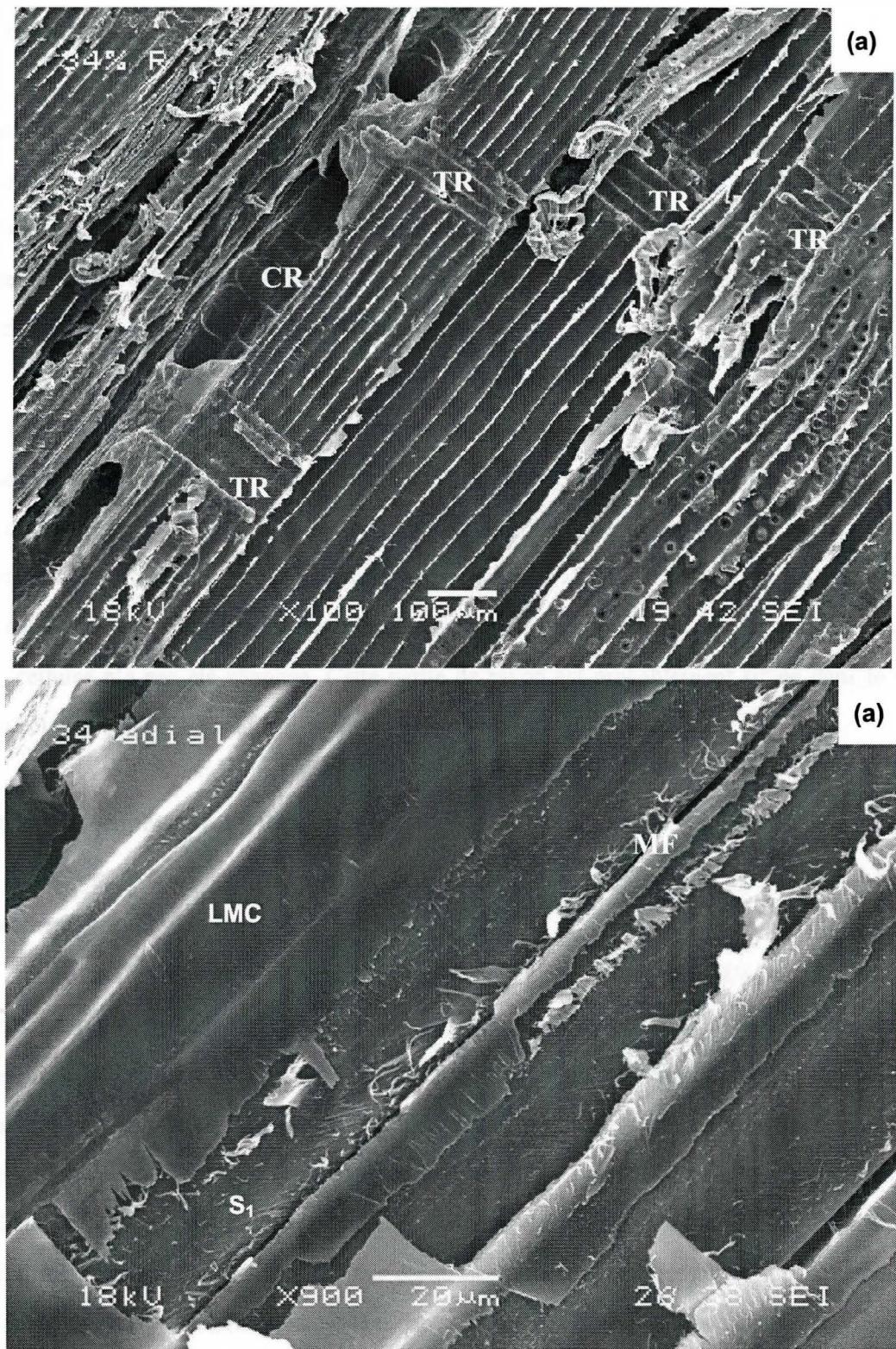


Figure 5-11 Microographies d'une coupe radiale d'un spécimen comprimé à 34% (CR: Canal résinifère; TR: Trace de rayon; LMC: Lamelle mitoyenne composée; S₁: Couche externe de la paroi secondaire)

Coupe tangentielle

La figure 5-12 montre les caractéristiques des plans tangentiels des spécimens séparés manuellement à l'aide d'une lame de rasoir. La surface tangentielle en vague (figure 5-12a) illustre la largeur différente des fibres dans la direction radiale. Les ponctuations ne sont pas présentes sur cette surface tangentielle. Les rayons ont une forme régulière, mais des parenchymes sont détruits. Toutes les fibres ont généralement conservées leur intégrité, sauf quelques-unes qui ont été extraites de la surface.

La séparation des fibres après une compression de 34% a eu lieu principalement entre la couche composée et la couche S1 et partiellement entre la S1 et la couche S2 de la paroi secondaire (figure 5-12b). Un rayon unisérié dans la zone de bois d'été laisse voir les trachéides transversales et les cellules de parenchyme. Au plan tangentiel, les cellules de parenchyme dans un rayon ont été comprimées dans le sens longitudinal. Cependant, la forme des cellules n'a pas été changée. Cette partie de rayon est probablement située dans le bois d'été et était protégée par la résistance du bois d'été.

5.4.2 Compression à 68%

Coupe transversale

La figure 5-13 présente l'influence d'une compression radiale de 68% sur la structure morphologique en coupe transversale. Avec une compression de 68% sans contrainte, en théorie, la déformation touche aussi les zones du bois d'été, car, en général, la proportion de bois d'été du pin gris [147] est de plus de 25%. Tel qu'il est montré à la figure 5-13a, la proportion de bois d'été de ce cerne annuel est presque de 30-40% en volume. La compression radiale à 68% a créé des fissures de tailles différentes dans la direction radiale. Les fissures ont lieu principalement dans la zone du bois d'été. Les canaux résinifères intacts ont disparus. On constate que les grosses fissures ont lieu dans ou près des rayons et des canaux résinifères, ce qui peut augmenter les passages de liquides/air et favoriser le dégazage et la pénétration, discutés aux chapitres 6 et 7.

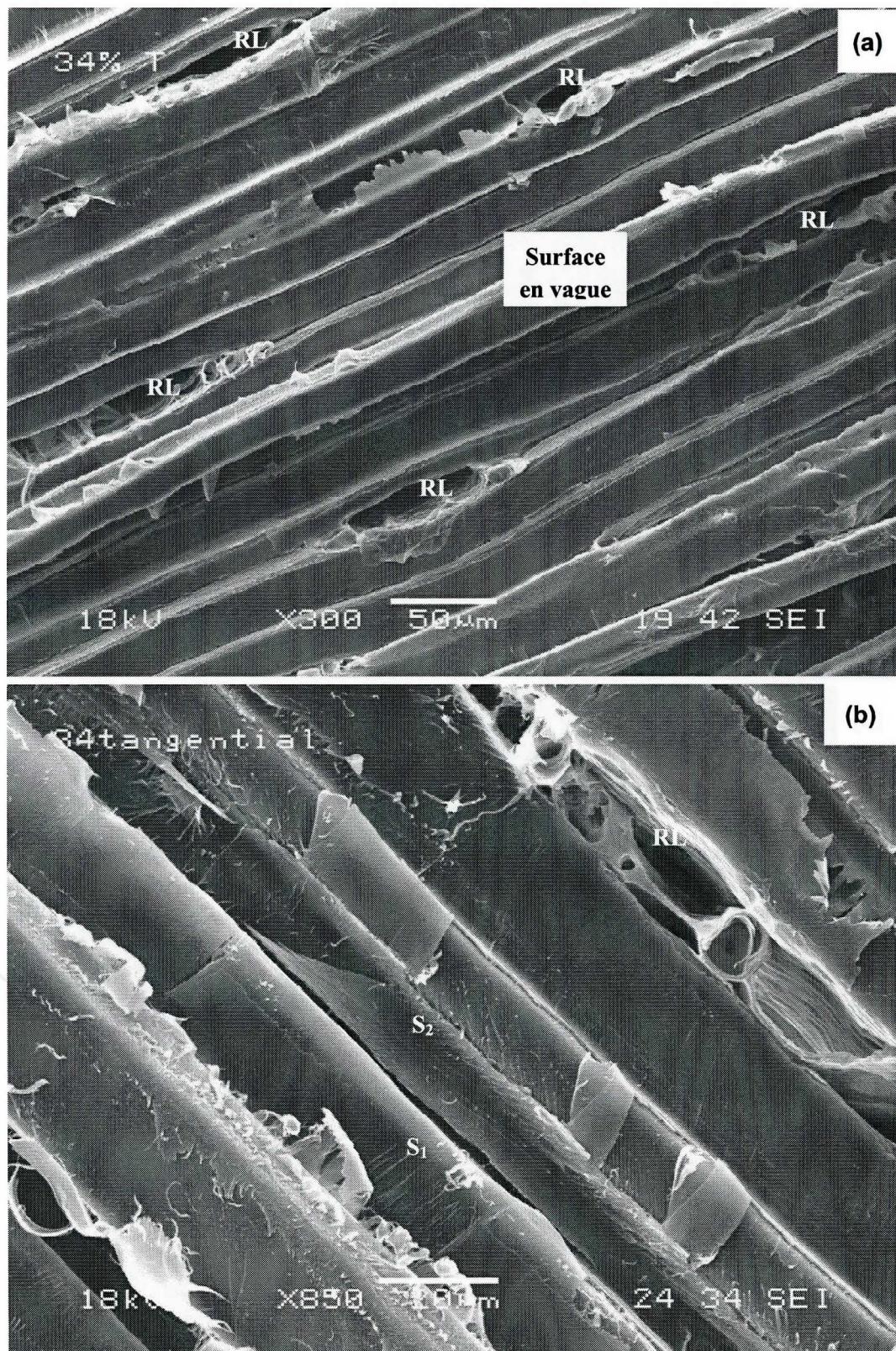


Figure 5-12 Microographies d'une coupe tangentielle de spécimen comprimé à 34% (RL: Rayon ligneux; S₁ et S₂ : Couches de la paroi secondaire)

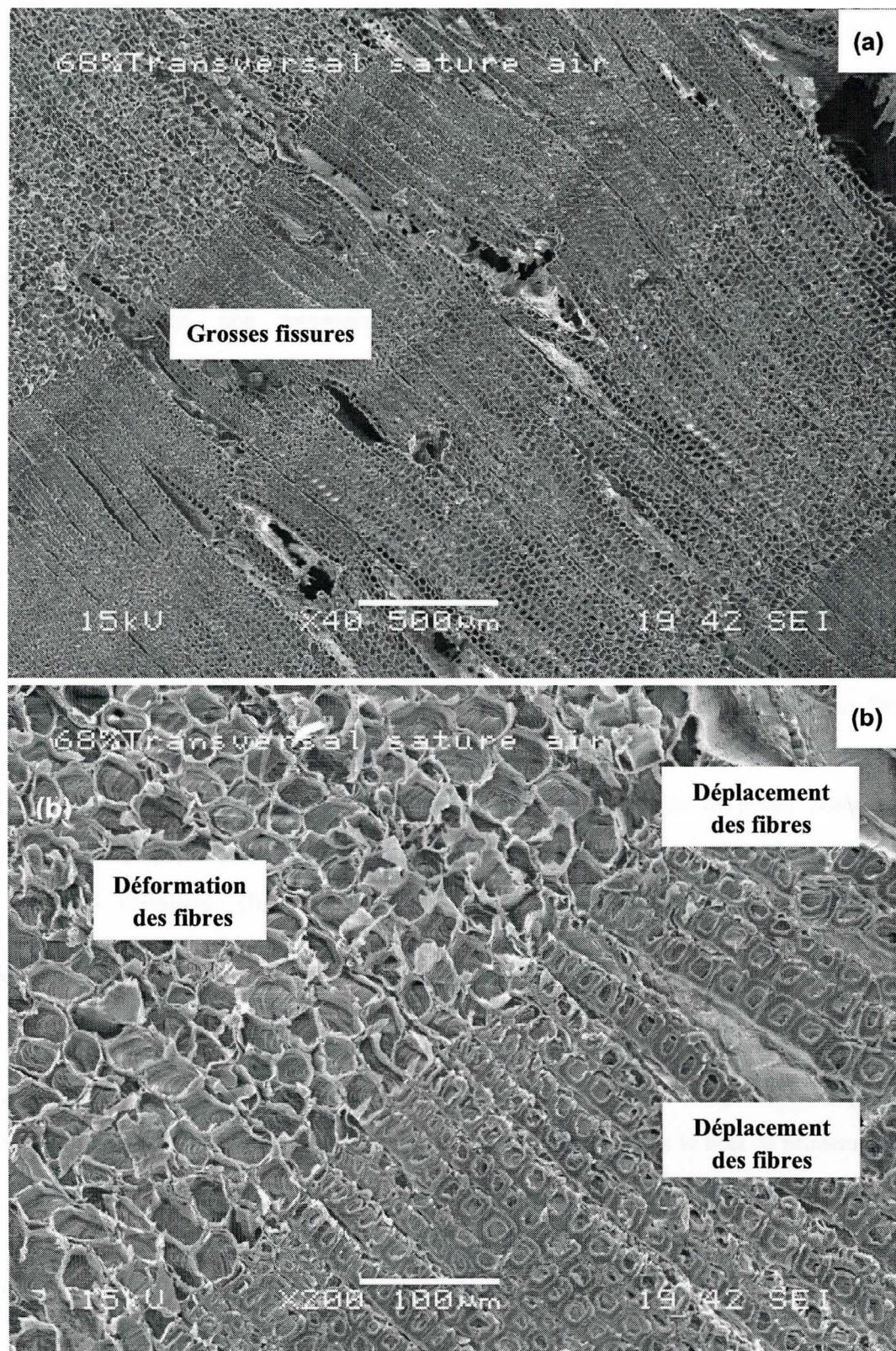


Figure 5-13 Micrographies d'une coupe transversale de spécimen comprimé à 68%

À plus fort grossissement (figure 5-13b), on voit que la déformation des lumens et des parois a lieu principalement dans la zone du bois de printemps. La forme des lumens et des parois dans la zone du bois d'été n'est presque pas changée. Mais on constate que la création de fissures vient du déplacement des fibres d'été. Des fissures de moins de 10 μm sont apparues aléatoirement. En pratique, la création de macro-fissures peut faciliter la pénétration de liquides dans les zones du bois d'été (passages plus petits) et le centre des blocs (plus difficile à atteindre). Donc, une compression radiale de 68% peut améliorer l'uniformité d'imprégnation chimique pour un court temps, ce qui aiderait à réaliser une bonne qualité de pâte chimico-mécanique.

Coupe radiale

La figure 5-14 montre les microscopies de la coupe radiale de spécimens comprimés à 68%. En général, les fibres sont bien séparées. Avec une compression de 68%, les fissures dans la direction tangentielle sur le plan radial se produisent dans et près des canaux résinifères (figure 5-14a et b). Une compression de 68% a produit un effet significatif sur la séparation des fibres ou la création de fissures en comparaison avec une basse compression de 34% (figure 5-11a et b). La création des macro-fissures augmente grandement le volume de pores. Mais il est visible que la majorité de la surface du plan radial est gardée intacte. Ce sont les parties loin des canaux résinifères (figure 5-14a) qui sont relativement moins influencées par la compression de 68% au niveau de la création de plus grosses fissures.

La figure 5-15 montre les micrographies d'une coupe radiale de spécimen comprimé à 68%. La différence des ponctuations entre les bois de printemps (figure 5-15a) et d'été (figure 5-15b) est bien claire : elles sont plus grandes et plus nombreuses dans le bois de printemps que celui d'été. Dans la direction radiale, la séparation s'est produite de façon importante entre les couches S_1 et S_2 et rarement dans la paroi composée (figure 5-15b). Law et Yang [58] ont étudié les effets d'une compression de 68% et des traitements (non traités et traités avec l'eau bouillante ou la liqueur de sulfite de sodium) de blocs (5×25×25 mm, R×T×L) sur la séparation des fibres.

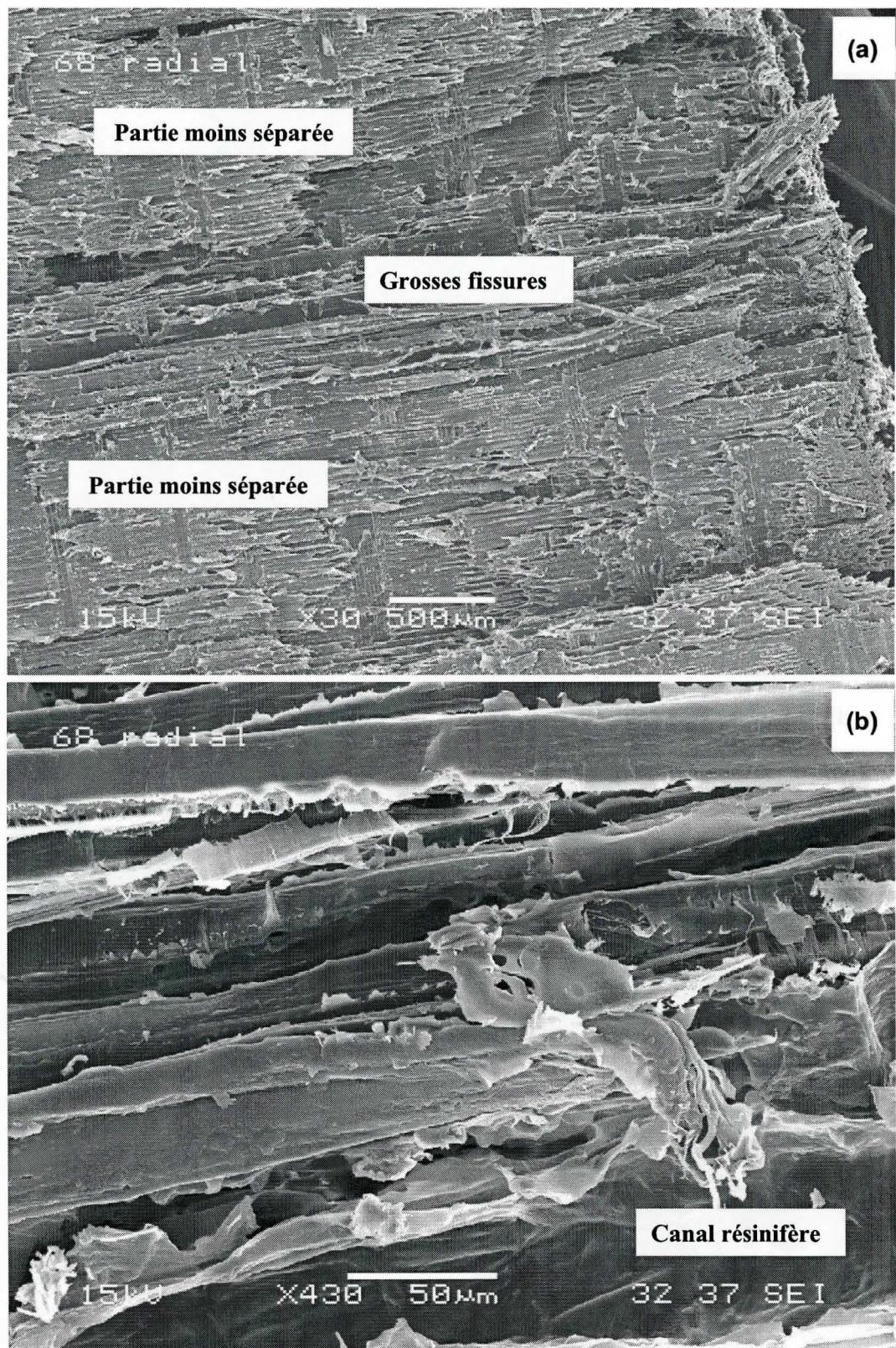


Figure 5-14 Micrographies d'une coupe radiale de spécimen comprimé à 68%

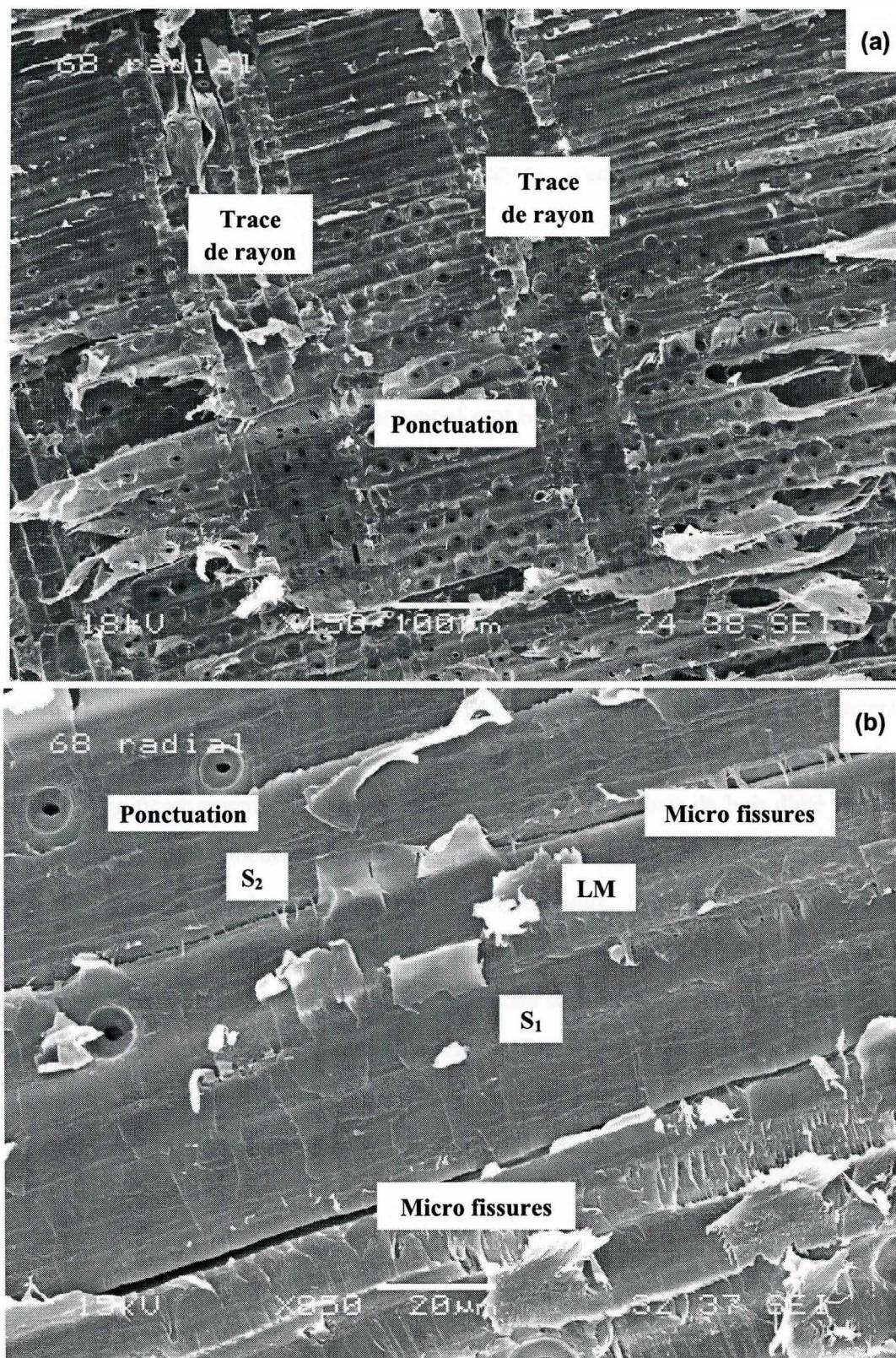


Figure 5-15 Microographies d'une coupe radiale de spécimen comprimé à 68% (a) bois de printemps et (b) bois d'été

Ils ont observé que les méthodes de traitement n'ont pas influencé la zone de séparation des fibres ; des micro-fissures ont lieu souvent entre la couche composée et la couche S₁ et parfois dans la jonction S₁-S₂ dans la zone de bois d'été, ceci est en accord avec nos observations: la création des fissures se situe entre des fibres voisines souvent entre LM et S₁ ou S₁ et S₂.

Coupe tangentielle

Les micrographies de la figure 5-16 montrent la séparation des fibres en coupe tangentielle d'un spécimen comprimé à 68%. Il est clair que la séparation des fibres ou des grosses fissures dans la direction radiale sur le plan tangentiel sont beaucoup plus évidentes que celles dans la direction tangentielle sur le plan radial (figure 5-14a). Les grosses fissures se situent dans les rayons ligneux et les canaux résinifères. Cependant le bois de printemps est beaucoup moins influencé (figure 5-14b).

La figure 5-17 illustre la nature de la séparation de la surface des fibres. La figure 5-17a montre les effets de la compression de 68% sur les fibres de bois d'été en coupe tangentielle. À partir de la forme de la surface tangentielle, on peut conclure que la compression de 68% n'a pas significativement déformé la surface tangentielle des fibres de bois d'été car la force était appliquée perpendiculairement à la surface tangentielle. De plus on peut bien voir deux ponctuations sans membrane et une grosse macro-fissure. Une ponctuation (à droite) est clairement visible sur la surface radiale; une autre (à gauche), qui est semblable, sur la surface tangentielle mais est aussi sur la surface radiale. Cela semble dû à un retournement de la fibre. Les grosses fissures dans la direction radiale et les ponctuations sans membrane peuvent augmenter les passages dans les directions radiale-longitudinale en réduisant la distance de diffusion des produits chimiques et améliorer les passages suivant les ponctuations sans membrane.

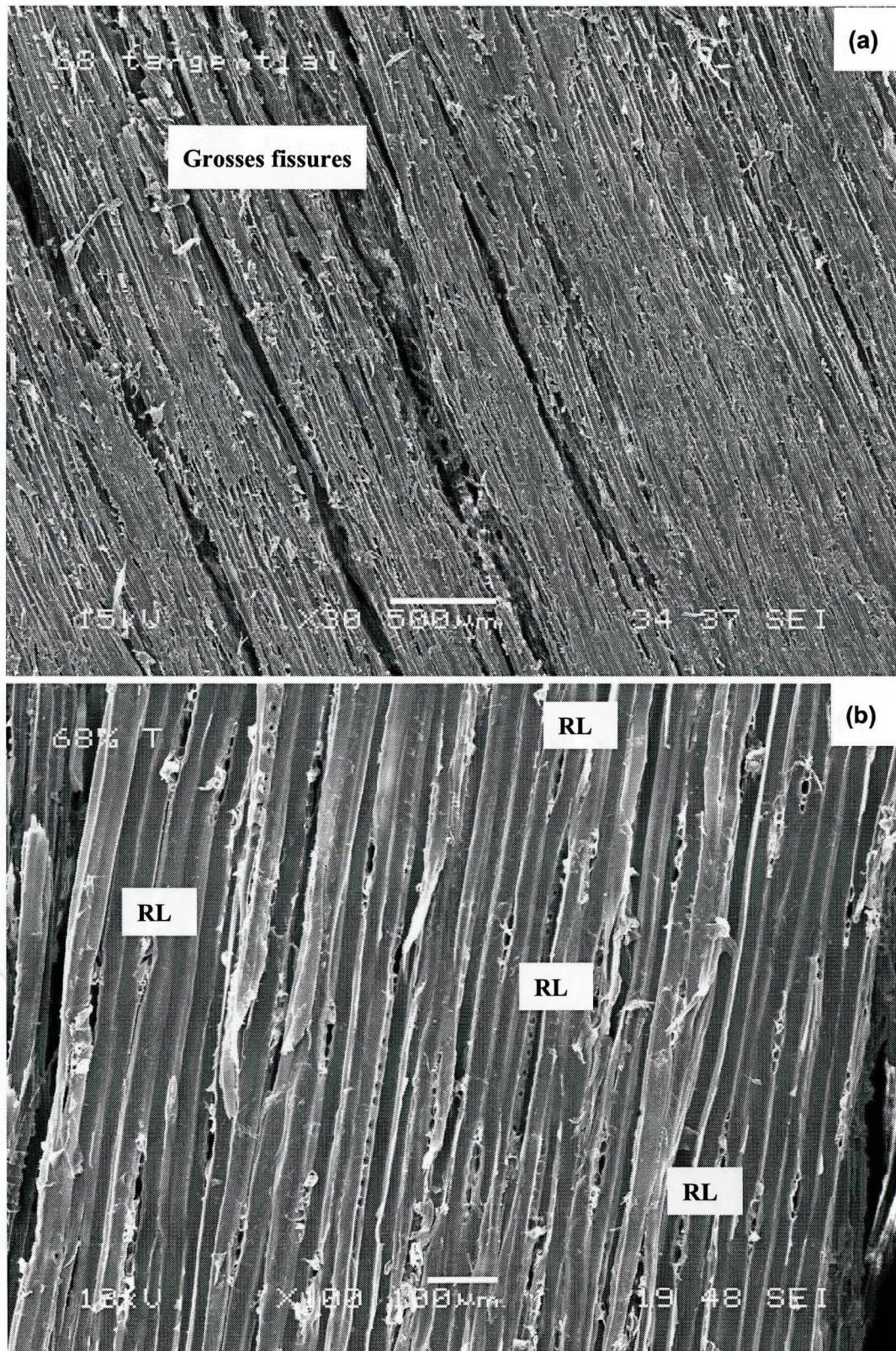


Figure 5-16 Microographies de séparation des fibres en coupe tangentielle d'un spécimen comprimé à 68%

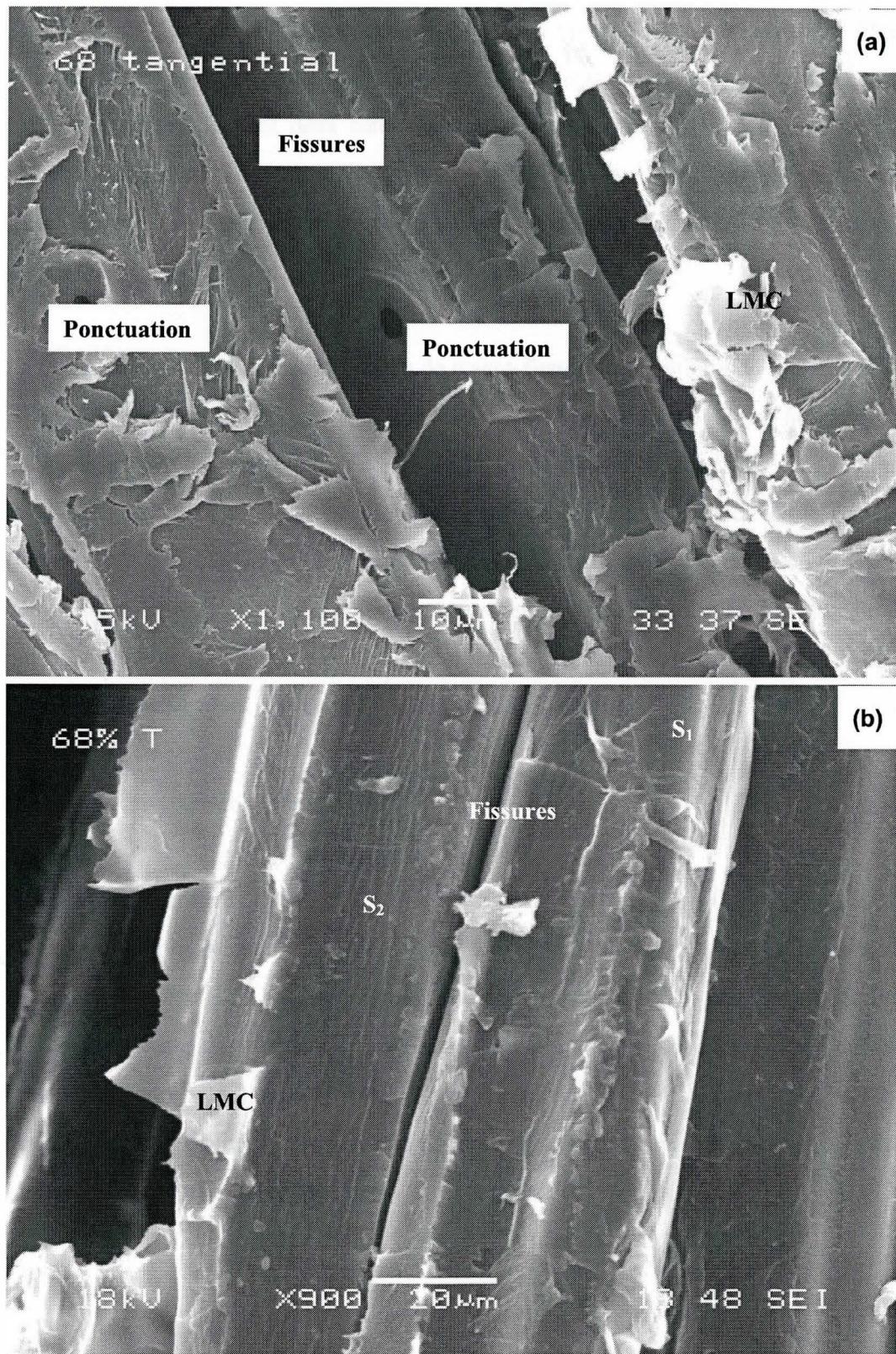


Figure 5-17 Microographies démontant la séparation des fibres en coupe tangentielle d'un spécimen comprimé à 68%, à plus fort grossissement

La figure 5-17b indique qu'une compression de 68% a déformé la paroi de fibres de printemps, sur le plan tangentiel, produisant une forme de vague causée par une dépression des parois au centre, alors les deux côtés sont maintenus. La séparation des fibres se produit principalement entre S1 et S2, mais aussi entre S1 et LMC. Au coin d'une fibre, à droite de la figure, il y a plusieurs fissures près de la LMC. Une petite macro-fissure et deux grosses macro-fissures sont visibles.

La compression de 68% a créé beaucoup de macro-fissures, au contraire de la compression de 34%, mais elle n'influence pas beaucoup le mode de séparation des fibres. Même pour une compression de 68%, l'effet de la compression sur la séparation des fibres dans la direction radiale (figures 5-16 et 5-17) est beaucoup plus présent que dans la direction tangentielle (figure 5-14a et 5-15), car la compression était appliquée dans le sens radial où se produit la déformation. Donc, l'amélioration de passage est principalement dans les directions radiales puis tangentielles. Cette évidence est aussi constatée à la section 7.4 : distribution d'hydroxyde de sodium dans les blocs imprégnés discutée au chapitre 7.

5.4.3 Compression à 85%

Coupe transversale

La figure 5-18 représente l'impact d'une très forte compression à 85% sur les microstructures en coupe transversale du bloc de pin gris. Une compression à 85% a créé de grosses fissures qui ne sont pas seulement dans la zone du bois d'été, mais aussi dans la zone du bois de printemps (figure 5-18a), en comparaison avec la compression de 68% (figure 5-13a). De plus, des dommages aux fibres se produisent à ce niveau de compression. Parfois de grosses fissures se trouvent dans l'axe de la fibre, brisant ainsi la paroi cellulaire.

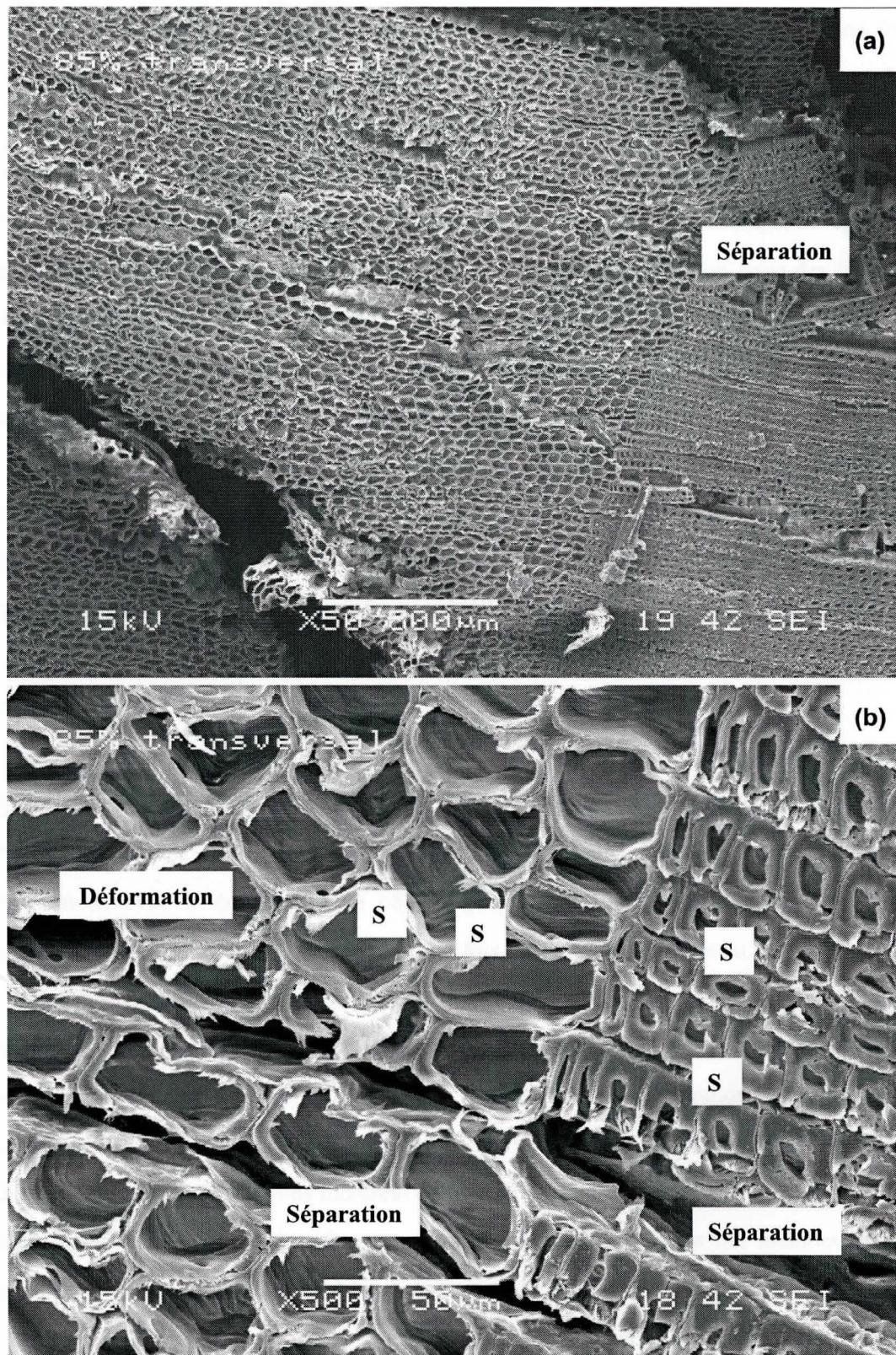


Figure 5-18 Microographies illustrant une coupe transversale de spécimen comprimé à 85% (S : Séparation)

La figure 5-18b montre que les fissures ont lieu dans toutes les régions suite à une forte compression à 85%. Dans la zone du bois d'été, les fissures se produisent principalement dans la direction radiale et beaucoup plus légèrement dans la direction tangentielle. Dans la zone du bois de printemps, la séparation commence souvent aux coins des fibres et autour des ponctuations aréolées. Due à la bonne flexibilité des fibres du bois de printemps, la séparation des fibres est beaucoup plus petite, en comparant avec la large séparation entre des fibres de bois d'été, à cause de la rigidité de ces dernières. Il est clair que les grosses fissures se produisent souvent en suivant d'abord les rayons et les canaux résinifères. Étant donné que la force de compression était appliquée dans la direction radiale, les cellules des rayons de bois, se composant de parenchymes à paroi mince, étaient écrasées en direction longitudinale et se sont séparées. La séparation des fibres était partielle, car des fibres étaient séparées principalement dans la direction radiale et légèrement dans la direction tangentielle. Cette séparation partielle des fibres favorise le procédé d'imprégnation et le raffinage mécanique.

Coupe radiale

La figure 5-19 montre la séparation de fibres dans la direction tangentielle en coupe radiale du spécimen comprimé à 85%. La compression à 85% a créé plus de séparation des fibres et un plus grand nombre de fissures qui peuvent aussi être plus grandes (figure 5-19a), en comparaison avec la compression à 68% (figure 5-14a). Les plus grandes fissures ont augmenté jusqu'à environ $100 \mu\text{m}$ qui est 2 à 4 fois plus grand que le lumen des fibres (figure 5-19b). Donc, la compression à 85% est très efficace pour améliorer la pénétration de liquide.

Les surfaces séparées du bois de printemps, pendant le processus de compression de 85%, sont montrées à la figure 5-20. De la figure 5-20a, on trouve que la séparation a suivi un rayon suffisamment grand qui est bien déformé. Les membranes des ponctuations sont déchirées (figure 5-20b). Les ponctuations montrent un trou au centre des membranes. On dirait que les tores sont expulsés par une grande pression d'eau. La déstructuration des membranes peut grandement améliorer les réseaux du bois et ainsi favoriser la pénétrabilité du bois. En outre, selon l'orientation microfibrillaire (texture) la séparation des trachéides du bois de printemps se fait principalement entre la couche S_1 et la couche composant LMC.

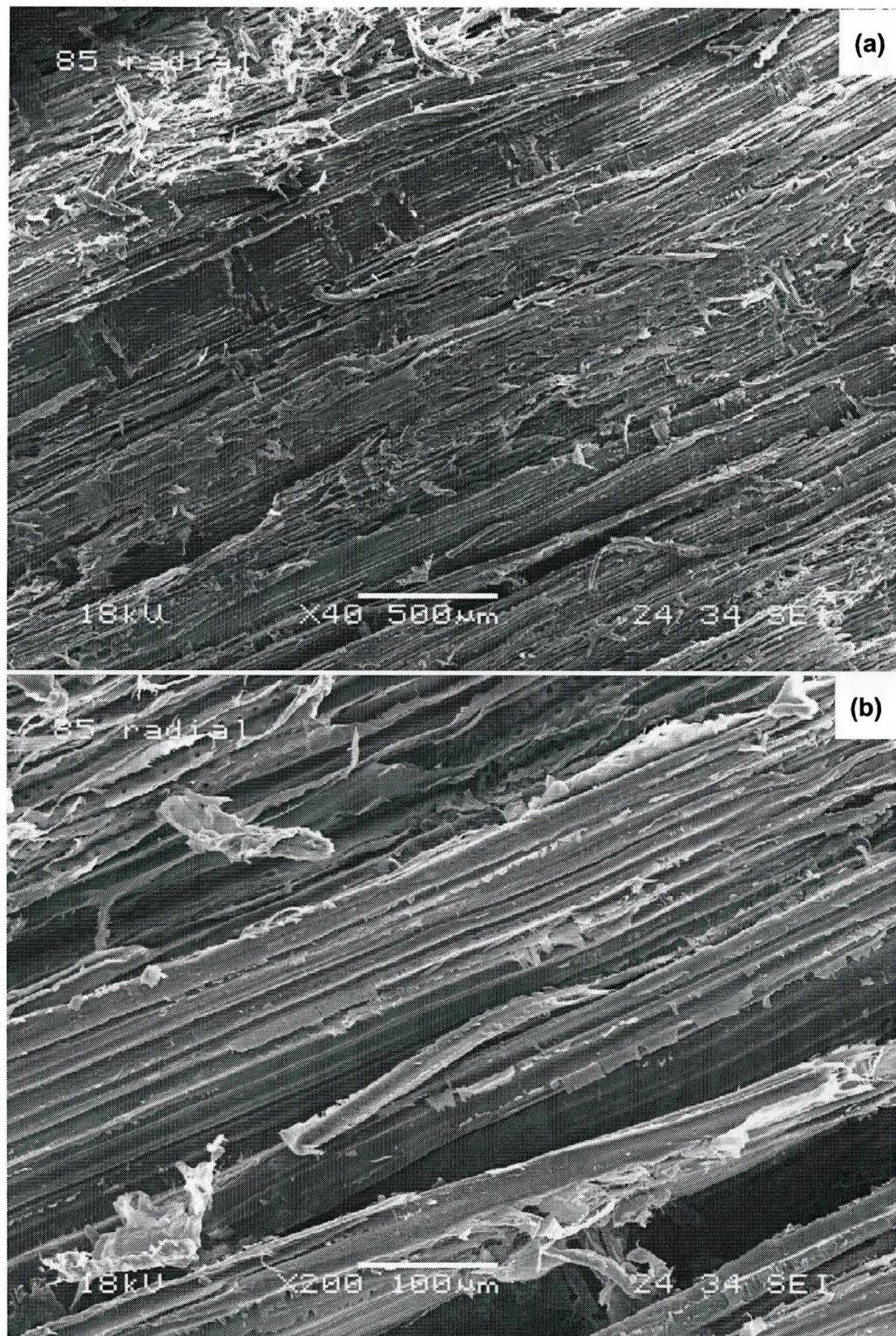


Figure 5-19 Microographies montrant la coupe radiale du spécimen comprimé à 85% (à faible grossissement)

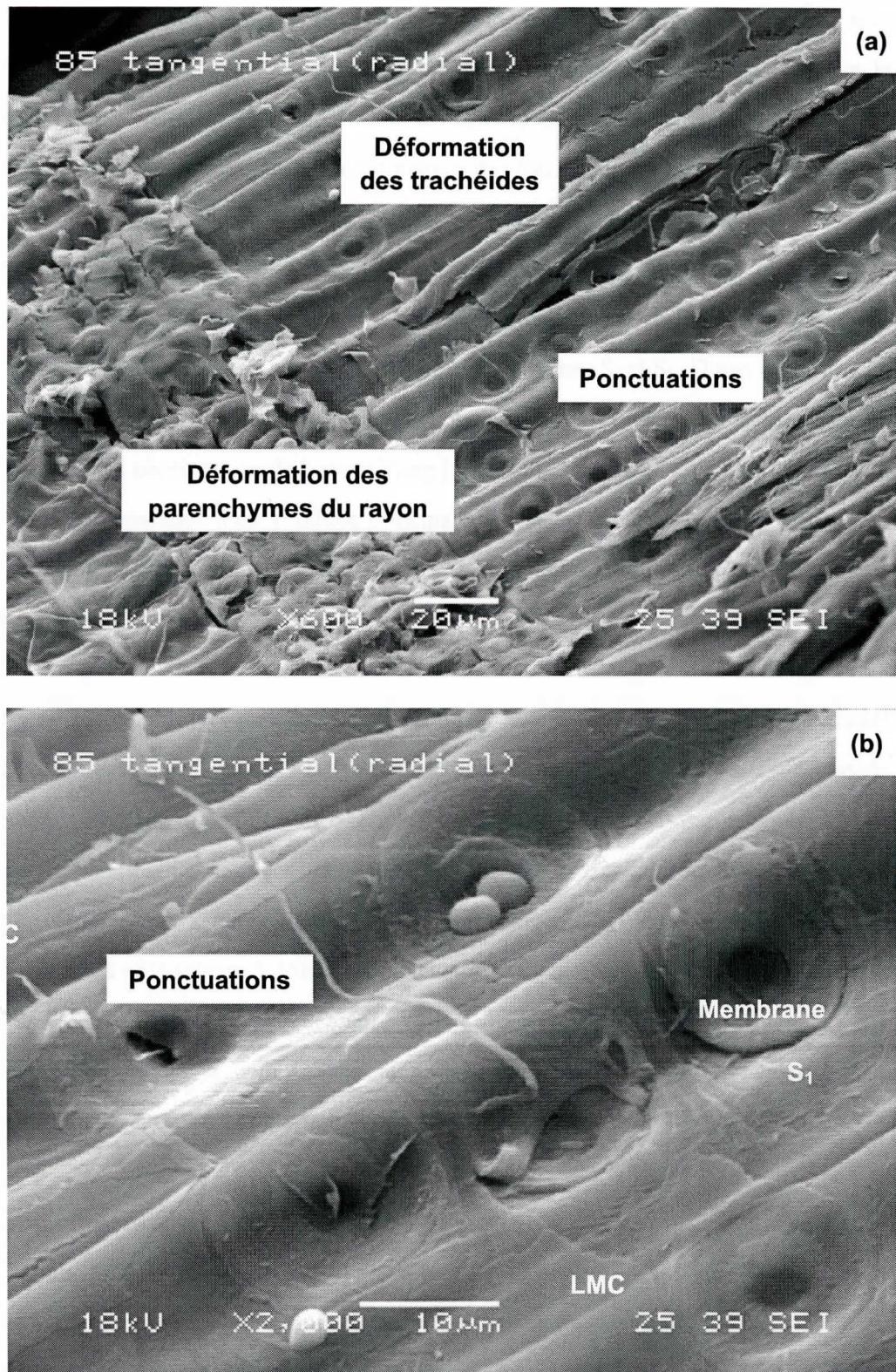


Figure 5-20 Surfaces radiales séparées pendant un cycle de compression/ décompression de 85% dans le bois de printemps

Les surfaces radiales séparées dans le bois d'été au cours d'une compression sont montrées à la figure 5-21 : des fissures axiales plus grosses sont trouvées dans la direction tangentielle entre les fibres voisines ; également des fissures axiales plus minces se situent dans la paroi radiale ; la déformation des trachéides est de beaucoup moindre que dans le bois de printemps (figure 5-20). Les textures de surface radiale du bois d'été à la figure 5-21b, qui sont différentes de celles du bois de printemps à la figure 5-20b, montrent que la séparation des trachéides du bois d'été dans la direction radiale se fait entre la LMC et la couche S_1 et également entre les couches S_2 et S_1 . Donc, on dirait que la compression de 85% a le même impact pour toutes les fibres. Les résultats sont en accord avec les observations de Law et Yang [58]. De plus, à une forte compression telle que 85%, la séparation s'est produite principalement dans le bois d'été, et la séparation des fibres du bois de printemps était partielle. Mais la déformation est bien claire pour les fibres du bois de printemps.

La figure 5-22 montre les surfaces radiales coupées à l'aide d'un rasoir pour voir l'impact de la compression radiale dans la zone où la séparation est moins évidente - le bois de printemps. On peut voir à la figure 5-22a les fissures situées dans les parois doubles et les lèvres de ponctuation gonflées. D'abord, les grosses fissures sont apparues à la suite d'une compression à 85%, dans la direction tangentielle, en comparant avec la compression à 68% (figure 5-15b). Les ponctuations montrées à la figure 5-22b semblent être aspirées – membrane penchée sur l'orifice ou lèvre de ponctuation, qui peut être formée au cours de la compression et du séchage. Cela a un effet négatif sur la pénétrabilité du bois, dû à l'obstruction des passages.

Coupe tangentielle

La figure 5-23 montre des caractéristiques de séparation des fibres sur la coupe tangentielle après une compression à 85%. La séparation dans la direction radiale est visible partout dans ces micrographies. On observe une grande ligne séparant les fibres en deux côtés; certaines fibres sont déplacées et tournées (figure 5-23b).

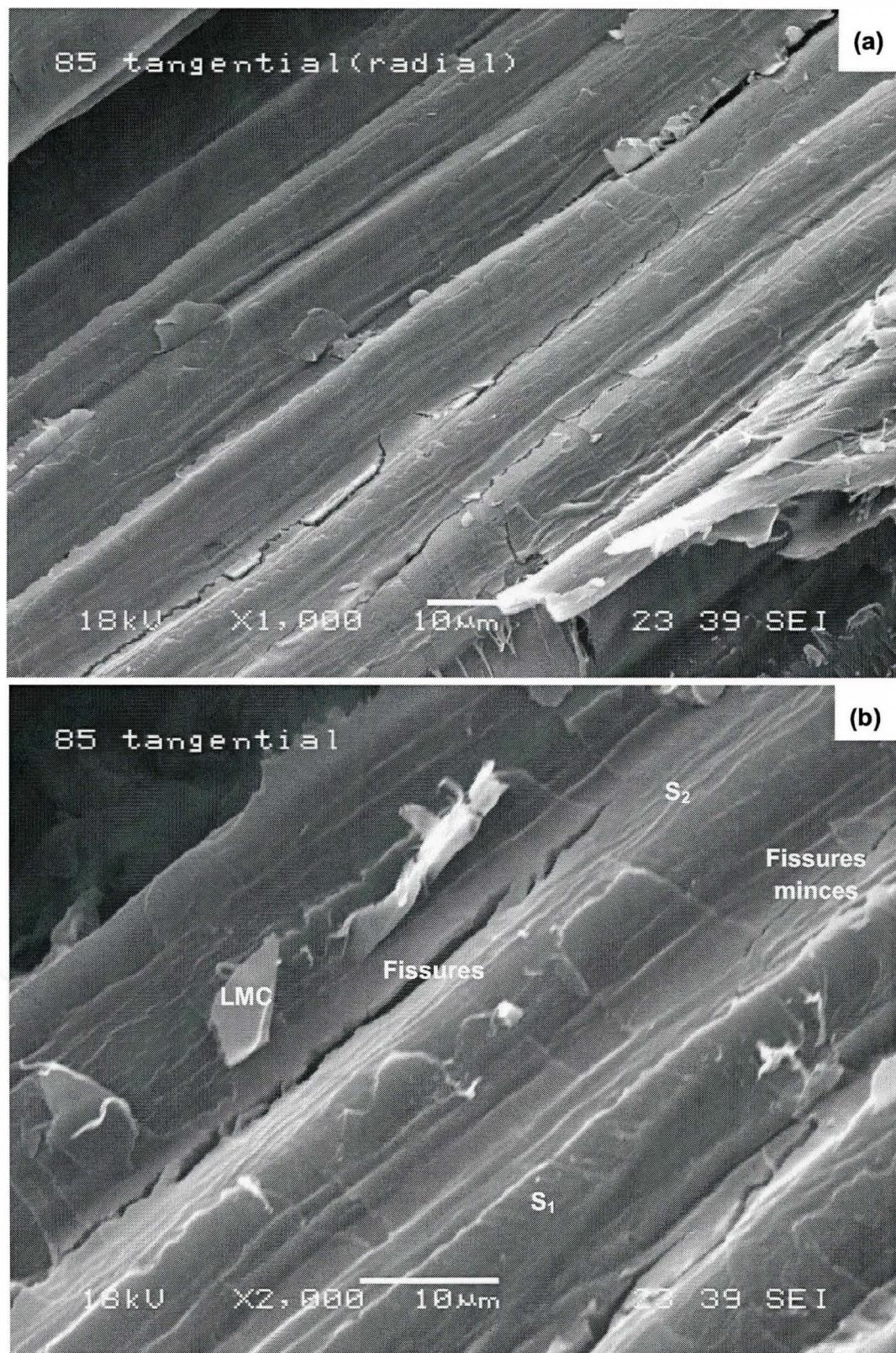


Figure 5-21 Microographies illustrant les surfaces radiales séparées dans le bois d'été du spécimen comprimé à 85%

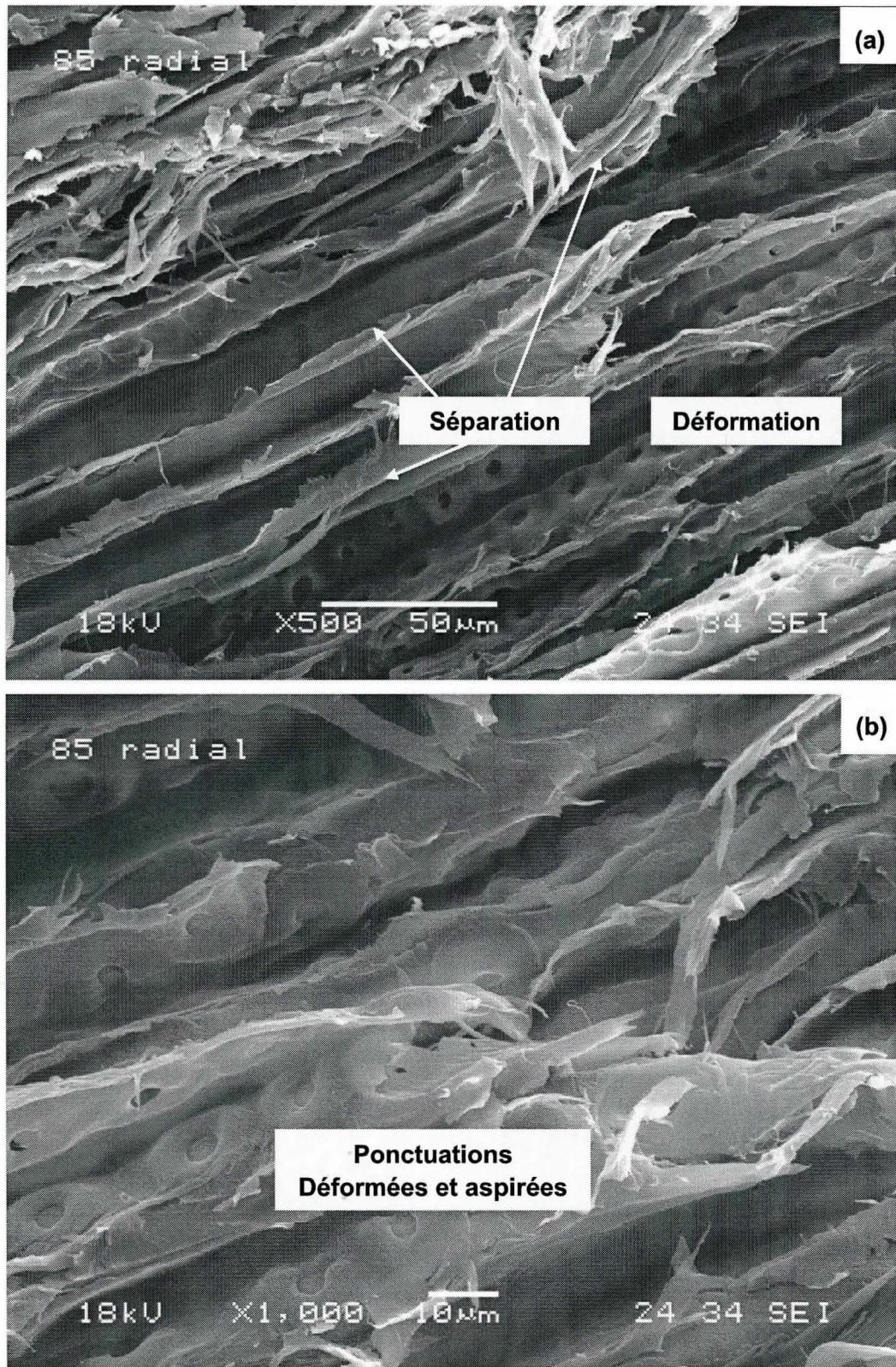


Figure 5-22 Surfaces radiales coupées des spécimens comprimés à 85%

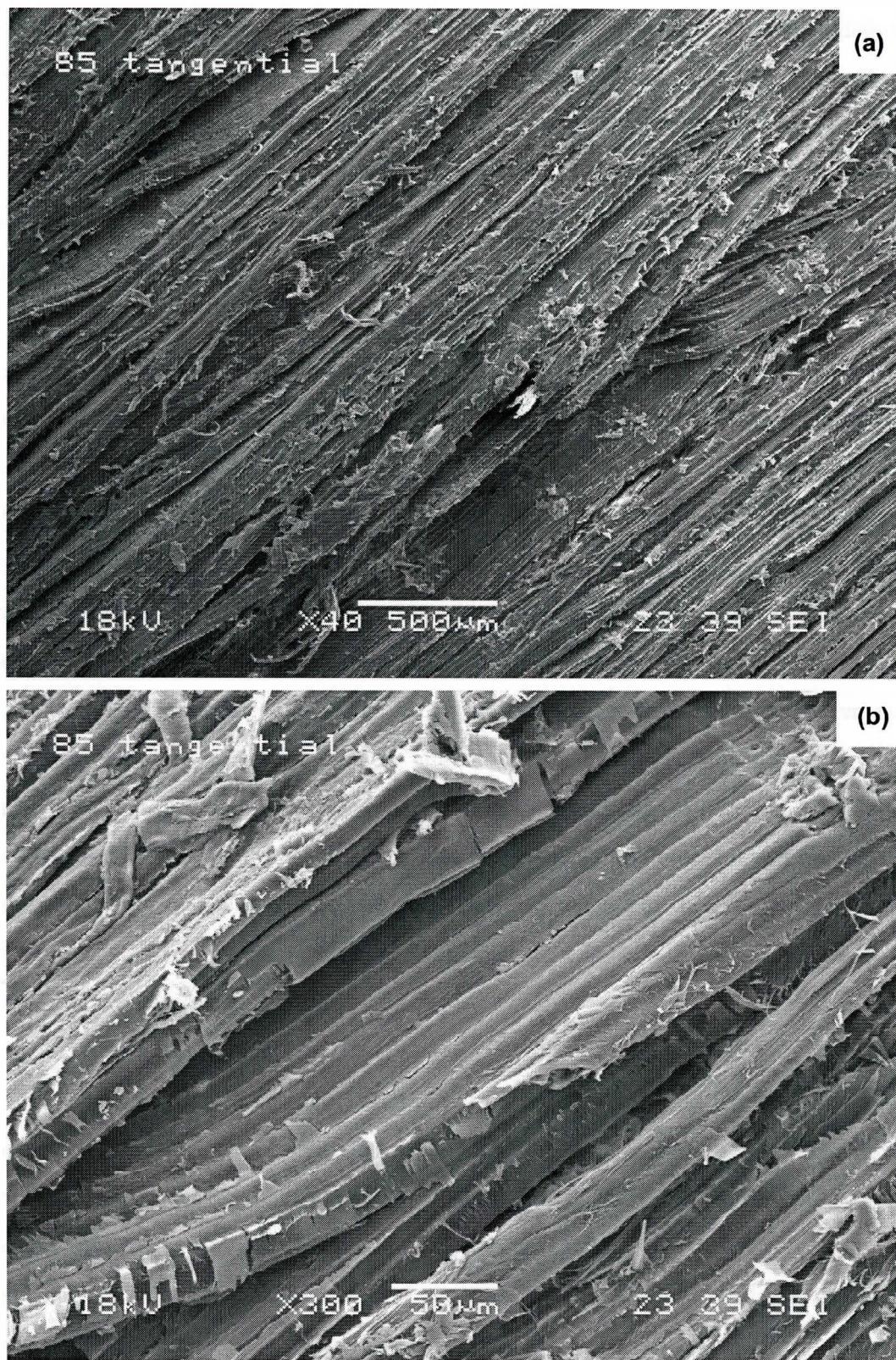


Figure 5-23 Micrographies démontrant une coupe tangentielle du spécimen comprimé à 85%, à faible grossissement

Sur le plan tangentiel (figure 5-24), la surface des fibres est bien régulière ou peu déformée après une forte compression, car la morphologie tangentielle des fibres nous montre qu'il s'agit probablement ici de fibres de bois d'été. La séparation de fibres du bois d'été se produit aussi généralement entre les couches S1 et LMC. Les ponctuations sans membrane favorisent le passage de liquide. De grandes séparations entre les fibres sont très présentes. Les résultats sont en accord avec les observations effectuées sur le plan radial.

Après la comparaison entre les coupes transversales avant et après les différents taux de compression radiale, on constate qu'une faible compression (ex. 34%) cause principalement une déformation des fibres du bois de printemps et un peu de micro-fissures. Par contre, une compression à 68% peut, de plus, entraîner les effets suivants : création des fissures dans la zone du bois d'été principalement dans la direction radiale; création de plus de fissures partout, même moins dans le bois de printemps et dans la direction tangentielle; séparation partielle des fibres; grande déformation des fibres du bois de printemps; la déformation des fibres varie avec le taux de compression radiale; et une plus grande déformation des lumens et des fibres. Donc, une compression élevée produit un effondrement complet des fibres tout en augmentant de façon significative le volume total de pores et leurs tailles [44, 66, 148, 149]. La compression radiale influence beaucoup plus la séparation des fibres et la déformation de la paroi en direction radiale qu'en direction tangentielle. Le nombre de fissures (ou séparation) et les grandeurs des fissures augmentent avec l'augmentation du taux de compression lorsqu'une compression est supérieure à 34%.

À une faible compression de 34%, l'effet n'est pas très significatif sur la création de macro-fissures ou la séparation de fibres. Cependant, son effet sur la création des fissures n'est pas évident car elles sont trop petites pour être visibles avec le MEB. De toute façon, les micro-fissures ont cependant très peu d'impact sur la contribution du volume de pores, comparativement aux macro-fissures, car le volume ($V = S \cdot L = \pi(d/2)^2 \cdot L$) varie en fonction du rayon des pores au carré.

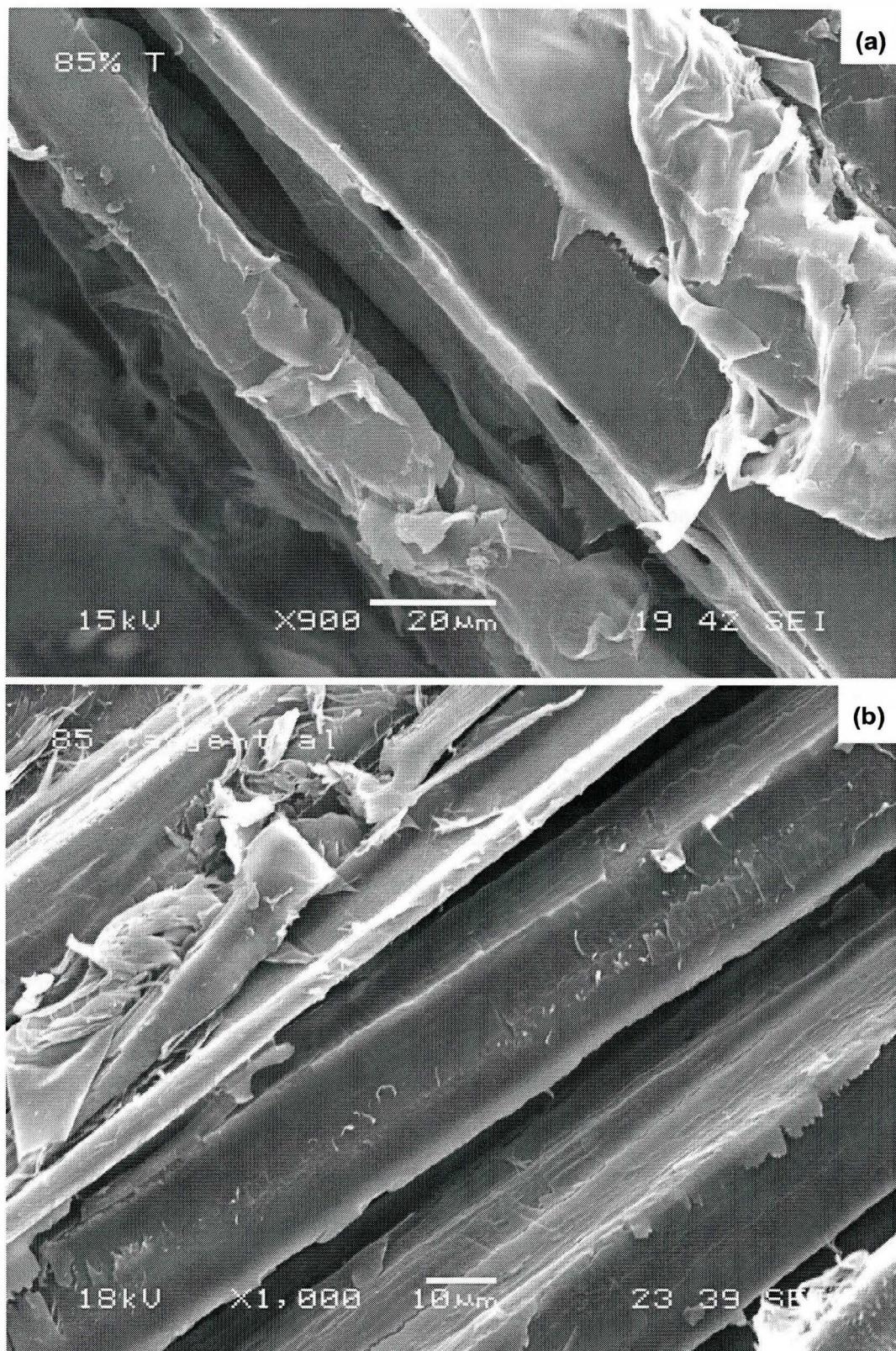


Figure 5-24 Microographies d'une coupe tangentielle de spécimen comprimé à 85% à fort grossissement

Par rapport aux macro-fissures, des micro-fissures de moins de 1 μm ne contribuent pas beaucoup à l'augmentation du volume de pores. Les pores dans les spécimens de bois du pin gris sont présumés en forme de capillaires. En assumant la longueur d'un capillaire (L), la circonference (C) et l'aire de coupe transversale (A), le rapport (S/V) de la surface de pore (S_p) sur le volume de pore (V) peut être calculée :

$$S_p = C * L = 2\pi(d/2) * L$$

$$V = S_p * L = \pi(d/2)^2 * L$$

$$S_p/V = 2/(d/2) = 4/d$$

où d est le diamètre de capillaire.

Quand d est plus petit, S_p/V est plus grand. Autrement dit, les petits pores augmentent largement la surface de pores, ce qui a un grand impact sur la diffusion de produits chimiques, et influence légèrement le volume de pores. Au contraire, quand d est plus grand, S_p/V est plus petit; les grandes fissures ou macro-fissures contribuent largement à l'augmentation du volume de pores et légèrement sur l'augmentation de la surface de pores.

5.5 Effet sur la teneur en eau maximale

L'absorption maximale d'eau des spécimens expérimentaux et le gonflement en épaisseur après le trempage dans l'eau sont présentés au tableau 5-2. L'absorption maximale d'eau en fonction du taux de compression radiale est montrée à la figure 5-25. La courbe d'absorption maximale d'eau montre qu'une faible compression, soit 34%, n'augmente pas l'absorption d'eau à saturation en comparaison avec les spécimens non-comprimés. Encore une fois on constate qu'une faible compression n'a pas d'effet positif sur le volume de vide des blocs. On constate aussi que la différence d'absorption d'eau à saturation entre les spécimens comprimés à 34% et 0% n'est pas statistiquement significative selon la méthode – données pairees à l'aide du logiciel JMP In. Cependant, lorsque les spécimens flottent sur la surface de l'eau et qu'un dégazage est fait, le bloc comprimé à 34% manifeste plus de petites bulles sur la surface tangentielle que le spécimen témoin. De cette observation, on peut déduire encore une fois que la faible compression de 34% a modifié les réseaux de passage pour l'air/liquide.

Tableau 5-2 Effet de la compression sur l'absorption maximale d'eau et le gonflement en épaisseur

Propriétés	Compression radiale, %				
	0	34	68	85	
Absorption d'eau maximale, gEau/gBois	48 heures	1,69	1,65	1,90	/
	56 heures ^a	1,68	1,65	1,90	2,43
	56 heures ^b	1,67	1,63	1,86	2,36
Augmentation d'eau par rapport à 0% de compression, %	0	0,0	11,7	41,3	
Épaisseur avant imprégnation, mm	0	10,1	9,27	5,18	
Épaisseur après imprégnation, mm	0	10,2	9,96	9,47	
Gonflement, (Eap-Eav)/Eav*100%, %	0	1,39	4,17	83,67	

Note : Eap – épaisseur après trempage; Eav – épaisseur avant trempage

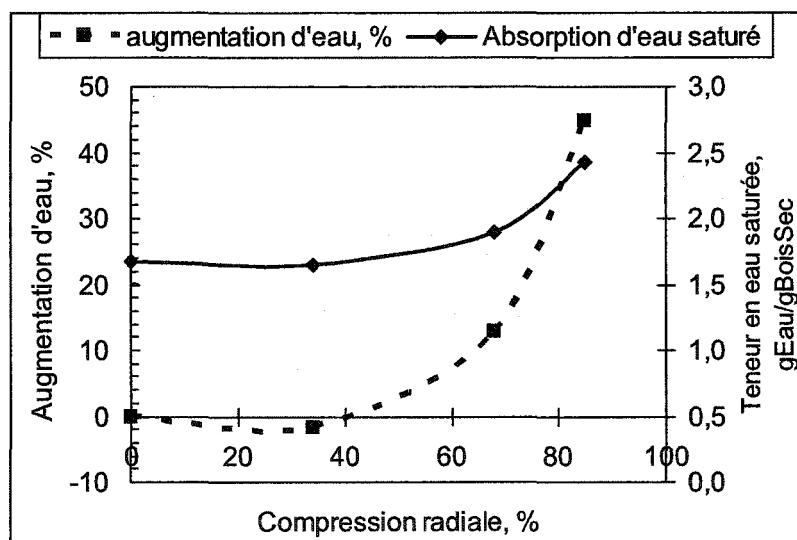


Figure 5-25 Effet de la compression radiale sur l'absorption maximale d'eau et l'augmentation d'eau après compression

L'absorption d'eau à saturation augmente de plus en plus vite après une déformation d'environ 45%. L'augmentation d'absorption d'eau à saturation (41%) à une compression à 85% est plus de 3 fois plus grande que celle à 68% (11,7%). La compression à 85% est plus efficace que celle de 68% en ce qui concerne l'absorption d'eau. Mais on a déjà constaté que la compression ne change pas beaucoup le volume des blocs, dû à la combinaison de

l'augmentation du volume des fissures et de la diminution relativement permanente du volume de lumens.

La figure 5-26 montre aussi le gonflement en épaisseur et le rétrécissement latéral des spécimens comprimés après l'imprégnation d'eau. L'augmentation de volume peut également expliquer l'augmentation d'absorption d'eau à saturation. On a remarqué que l'épaisseur des blocs comprimés à 85% a ré-augmenté seulement à 80% après imprégnation. Les lumens des fibres (trachéides) ont repris leur forme originale pendant l'imprégnation dans l'eau. Le relâchement des fibres pendant l'imprégnation dans l'eau cause l'augmentation d'épaisseur des blocs comprimés et celle du volume de vide qui vient des lumens des fibres. Il est clair que le volume de fissures augmente de plus en plus rapidement après une compression radiale d'environ 45%, mais ce n'était pas le cas lorsque la compression était inférieure à 34%.

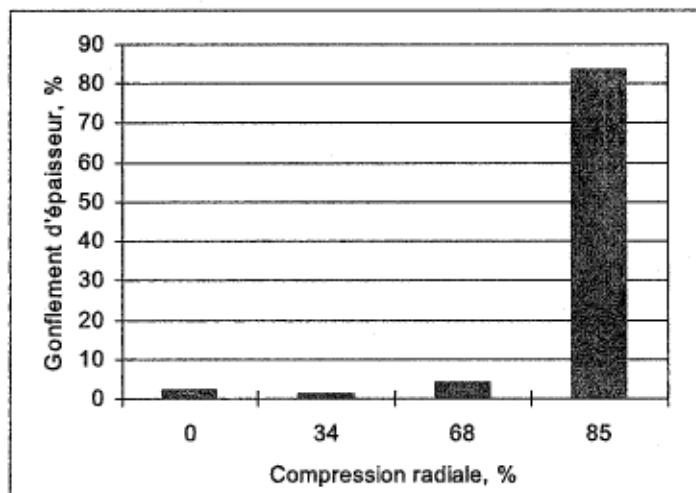


Figure 5-26 Gonflement en épaisseur des blocs après l'imprégnation d'eau en fonction du degré de déformation

5.6 Conclusion

- 1) L'humidité des blocs diminue de plus en plus lentement avec l'augmentation de compression. Elle varie avec le taux de compression radiale à la puissance négative.

- 2) La densité des blocs augmente un peu à faible compression et ensuite diminue de plus en plus rapidement avec l'augmentation de compression. La densité des blocs est fonction du taux de compression de façon polynomiale.
- 3) La compression radiale à basse déformation, par exemple 34%, cause principalement la déformation des fibres du bois de printemps. Elle ne permet pas d'augmenter le volume de vide mais, au contraire, diminue un peu le volume total de vide en déformant les lumens du bois de printemps. La compression radiale à haute déformation peut clairement augmenter le volume de vide par la création de macro-fissures.
- 4) L'effet de la diminution du volume de lumen par une compression peut être réduit par un deuxième relâchement lors du trempage dans l'eau. L'absorption d'eau à saturation est influencée surtout par la création de volume de fissures et un peu par la déformation permanente des fibres.
- 5) L'observation à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) montre que l'endroit le plus fragile lors de la compression radiale est les rayons qui sont en fait comprimés longitudinalement. Les macro-fissures se produisent premièrement dans les rayons et les canaux résinifères, ensuite dans la région près de ces éléments, où des fibres voisines sont séparées dans la couche composée et la couche S1 des fibres voisines.
- 6) Mis à part les rayons et les canaux résinifères, les points fragiles sous une compression radiale sont les ponctuations aréolées entre des fibres adjacentes, les coins des fibres et aussi les couches de la lamelle mitoyenne composée entre les fibres du bois d'été. Sous une forte compression, le tore des membranes de ponctuation peut être expulsé dans les fibres du bois de printemps et une petite séparation commence au bout des lèvres des ponctuations des fibres du bois printemps.
- 7) La séparation des fibres dans la direction radiale est plus présente que dans la direction tangentielle, car la force de compression est appliquée perpendiculaire à la direction

tangentielle. La séparation des fibres dans la direction tangentielle se réalise seulement sous une forte compression comme 85%. La séparation partielle entre deux fibres voisines est de plus en plus présente avec l'augmentation du taux de compression radiale. La taille et le nombre des macro-fissures augmentent de plus en plus rapidement avec l'augmentation du taux de compression.

- 8) Le MEB ne peut pas nous montrer la création de micro-fissures. Mais on sait que les macro-fissures proviennent de micro-fissures et les micro-fissures prennent place aux points fragiles ou aux points qui étaient sujets à une grande force. Ce qui veut dire que la compression radiale crée aussi de nombreuses micro-fissures, mais les micro-fissures ne contribuent pas beaucoup à l'augmentation de volume. Un taux de compression radiale trop élevé, soit plus de 80-85%, peut causer un léger bris des fibres suivant la direction longitudinale des fibres.

Chapitre 6 - RÉSULTATS ET DISCUSSION – PARTIE II : IMPRÉGNATION D'EAU

6.1 Variables réponses

L'augmentation de poids des blocs après l'imprégnation est principalement due à l'absorption d'eau causée par le phénomène de pénétration. Pour bien comprendre le mécanisme de pénétration de la liqueur et l'effet des variables expérimentales sur l'absorption d'eau durant le procédé d'imprégnation, on utilise trois variables réponses pour analyser les résultats. Ces trois variables réponses sont la teneur en eau du bloc (gEau/gBois), l'absorption d'eau (gEau_{ab}/gBois) et le degré de pénétration (%).

Le terme «teneur en eau» représente le poids total d'eau par gramme de bois sec. Il est calculé en divisant le poids d'eau total (l'eau initiale et l'eau absorbée, c'est-à-dire l'augmentation de poids des blocs) par le poids du bloc sec. Étant donné que le pourcentage de matières extractibles à l'eau étant d'environ 1,5% dans l'eau chaude pour les poudres de pin gris [150] et que, dans notre étude des blocs (10x25x25 mm) ont été utilisés et trempés dans l'eau froide, la dissolution des substances solubles dans l'eau est ignorée. Le terme «absorption d'eau» représente le poids d'eau absorbée par gramme de bois sec, ce qui exclut la teneur initiale en eau (gEau_{ab}/gBois_{sec}). Alors le terme «absorption d'eau» représente relativement la capacité absolue d'absorption d'eau. Ces deux termes sont élaborés comme suite :

$$T_{et} = P_{et} / P_{bs} = (P_{ei} + P_{ea}) / (P_{bi} \times S_i) = P_{ei} / (P_{bi} \times S_i) + P_{ea} / (P_{bi} \times S_i)$$

$$A_e = P_{ea} / P_{bs} = P_{ea} / (P_{bi} \times S_i)$$

Où T_{et} est la teneur en eau totale et A_e est l'absorption d'eau. P_{ei} , P_{ea} et P_{et} sont les poids de l'eau initiale dans les blocs, de l'eau absorbée et de l'eau totale (la somme de l'eau initiale et de l'eau absorbée), respectivement. P_{bs} et P_{bi} sont les poids de blocs secs absolus et de blocs initiaux. S_i (siccité) est la fraction de matière sèche contenue dans le bloc humide. Puis la relation entre ces deux termes est décrite par la relation: $T_{et} = T_i + T_a$ (Teneur en eau (initiale) + Absorption d'eau).

Le terme « degré de pénétration » est le pourcentage de vide remplis d'eau sur le vide total dans les blocs de bois, qui représente la capacité relative d'absorption d'eau. Le degré de pénétration (DP) a plus de sens pour évaluer l'achèvement de la pénétration car il montre directement le pourcentage de vide (100% - DP%) qui demeure présent dans le bloc après l'imprégnation. Mais il y a plusieurs facteurs qui influencent ce dernier, par exemple : le volume change par la suite du gonflement du bois surtout dans les directions radiales et tangentialles et la densité du liquide est influencée par la température. Pour simplifier le calcul du degré de pénétration, on fait les hypothèses suivantes. 1) Le volume des blocs est constant pendant l'imprégnation expérimentale. 2) La perte de composants chimiques du bois est négligeable. 3) La densité des composants du bois est constante et de 1,500 g/cm³ [9].

Le volume des blocs (V_b), le volume solide (V_s) et le volume vide (V_v) peuvent être déterminés par les propriétés initiales des blocs.

$$V_b = (P_{bi} \times S_i) / D_b$$

$$V_s = (P_{bi} \times S_i) / D_s$$

$$V_v = V_b - V_s$$

Où D_b est la densité des blocs secs absolu et D_s la densité des composants du bois.

Le volume d'eau initial (V_{ei}) et le volume d'eau absorbée (V_{ea}) peuvent être déterminés par les propriétés $V_{ei} = P_{bi} \times (1 - S_i) / \rho_e = P_i \times (100 - S_i) / \rho_e$

$$V_{ep} = P_{ea} / \rho_e$$

Où, P_{ea} est le poids de l'eau absorbée. ρ_e est la densité d'eau à 22°C.

Le degré de pénétration initial (DP_o), le degré de pénétration présent (DP_p) et le degré de pénétration total (DP) peuvent être déterminés par les propriétés des blocs.

$$DP_o = V_{ei} / V_v$$

$$DP = (V_{ei} + V_{ea}) / V_v = DP_o + DP_p$$

DP_o est le degré de pénétration initial, DP_p le degré de pénétration pénétré et DP le degré de pénétration total.

La transformation entre la teneur en eau et le degré de pénétration est la suivante :

$$\begin{aligned}
 DP &= DP_o + DP_p = P_{et}/V_v \times 100\% = P_{et}/(V_b - V_s) \times 100\% \\
 &= [P_{et} / [(P_{bi} \times S_i/D_b) - (P_{bi} \times S_i/D_s)]] \times 100\% \\
 &= [P_{et} / [(P_{bi} \times S_i(1/D_b - 1/D_s))] \times 100\% \\
 &= [P_{et} / [(P_{bs}(1/D_b - 1/D_s))] \times 100\% \\
 &= T_{et}/(1/D_b - 1/D_s) \times 100\%
 \end{aligned}$$

6.2 Optimisation du temps de dégazage

Dans ces essais, on a étudié principalement l'influence du temps de dégazage sur l'absorption d'eau afin d'optimiser le temps requis pour un dégazage maximum.

6.2.1 Effet de la compression et du temps de dégazage

L'absorption d'eau des spécimens sans ajustement d'humidité, en fonction du temps des spécimens sous vide (620 mm Hg) avant l'imprégnation, est montrée à la figure 6-1. Dans chaque graphique, il est clair que la quantité d'eau absorbée dépend grandement de la densité du bloc. Les spécimens qui ont une densité initiale plus faible absorbent plus d'eau que ceux dont la densité est plus élevée, car une densité faible indique plus d'espace ou de volume de vide. Au début de l'imprégnation, l'absorption d'eau augmente dramatiquement, ensuite de plus en plus lentement pour finalement atteindre un plateau. La forme des courbes indique trois étapes distinctes d'imprégnation avec différentes vitesses d'absorption d'eau. Durant la première minute environ, l'augmentation d'absorption d'eau semble presque linéaire bien que peu de données n'aient été recueillies dans cette période initiale qui est une période plus efficace et très courte. Lorsque le temps du dégazage augmente de 1 à 2 ou 5 min, l'absorption d'eau ralentit graduellement. C'est la période où la pénétration est presque complétée. Finalement, l'absorption d'eau atteint un plateau. C'est une période résiduelle dans laquelle la vitesse d'absorption d'eau devient très lente et de plus en plus lente. Ce phénomène manifeste l'influence du temps de dégazage (sous vide) des spécimens sur l'absorption d'eau et aussi indirectement sur le vrai gradient de pression. Les résultats expérimentaux de Malkov *et al.* [73, 96] montrent que les temps de pénétration initiale et résiduelle sont plus longs en

comparant avec nos courbes. La température élevée et la haute pression utilisée pendant l'imprégnation causent une plus longue durée pour la pénétration qu'un dégazage avant l'imprégnation dans nos essais.

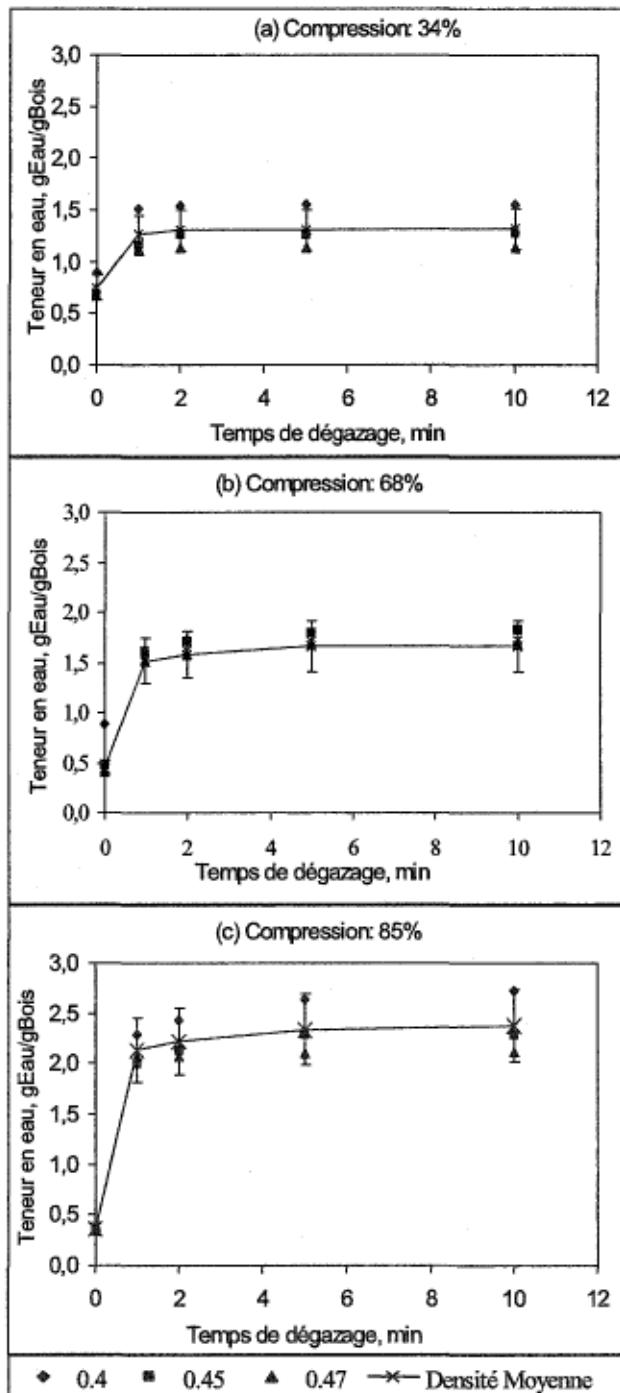


Figure 6-1 Teneur en eau en fonction du temps de dégazage sous vide (620 mm Hg) durant 5 minutes d'imprégnation : (a) 34%; (b) 68% et (c) 85% de compression et sans ajustement d'humidité

En comparant les spécimens comprimés aux différents taux de déformation, on trouve que, pour les spécimens comprimés aux plus fortes compressions, la deuxième période dure plus longtemps. La différence des réseaux de passages peut bien l'expliquer, car l'efficacité du dégazage (620 mm Hg et 1 min) des spécimens est influencée par les réseaux de passages. Dans les échantillons témoins (blocs sans compression), les capillaires sont des canaux résinifères (grands et peu nombreux), des lumens de trachéides (nombreux, ayant un rayon typique de 10-15 μm) et des petites ouvertures ($\sim 0.04\mu\text{m}$) de membranes de ponctuations [9, 11]. Les spécimens comprimés aux différents taux de déformation présentent des micro ou/et macro-fissures créées entre les parois cellulaires, une destruction des membranes et probablement une modification d'ouverture des membranes de ponctuations, telles qu'observées par MEB et discutées au chapitre 5. L'amélioration des réseaux de passages (passages plus nombreux) ainsi que la destruction et la modification des ponctuations, peuvent favoriser l'enlèvement d'air lors du dégazage et faciliter la pénétration d'eau. Des macro-fissures peuvent être plus grosses que les lumens; et des micro-fissures peuvent être plus petites et ne peuvent pas être vues à l'aide de la micrographie électronique à balayage.

Basée sur la loi de Jurins [9], la pression capillaire est définie comme une fonction de la tension de surface (σ), de l'angle de contact (θ) et du rayon de capillarité (r). Bien sûr, en réalité, la géométrie des capillaires varie significativement dans le bois résineux (lumens des fibres de printemps et d'été, canaux résinifères, rayons ligneux), résultant en de très grandes différences de pression capillaire. Dans notre cas, on peut utiliser la loi de Jurins pour examiner l'effet du gradient de pression (sous vide) sur la pénétration d'eau. Prenant la tension de surface de l'eau de 73 dynes/cm à 20°C [151] et un angle de contact de 30° [152], on peut calculer le rayon le plus petit pour lequel le dégazage, sous le gradient de pression de 620 mm Hg utilisé dans nos essais, qui peut grandement aider l'eau à pénétrer. Le tableau 6-1 montre la relation entre la pression capillaire et le rayon capillaire selon la loi de Jurins, qui stipule que la montée capillaire est inversement proportionnelle au diamètre du capillaire, donc que plus le capillaire est fin, plus la montée sera importante. C'est-à-dire que le plus petit capillaire produit une plus grande pression capillaire. Dans le cas d'imprégnation, de très petites micro-fissures ou micro-pores peuvent automatiquement absorber l'eau par leur grande pression

capillaire. Mais de grands capillaires comme les lumens produisent de très basses pressions capillaires. Dans nos essais avant imprégnation, le but du dégazage des spécimens est d'enlever l'air occlus dans les spécimens, d'augmenter le gradient de pression dans les grands capillaires comme les lumens et enfin, d'aider la pénétration du liquide.

Tableau 6-1 Relation entre la pression capillaire et le rayon capillaire d'après la loi de Jurins

Équation de Jurins	$r = 2\sigma\cos\theta/\Delta P$					
Tension de surface pour l'eau (σ)	73 dynes/cm					
Angle de contact (θ)	30°					
Pression capillaire ΔP , mm Hg	620	500	400	300	200	100
1mm Hg = 133,322Pa, Pa=10dynes/cm ²	$r = (2*73*\cos 30/(\Delta P * 133,322 * 10)) * 10^4$, μm					
Rayon capillaire (r), μm	1,53	1,90	2,37	3,16	4,47	9,48
Diamètre, μm	3,06	3,80	4,74	6,32	8,94	18,9

Au début de l'imprégnation, le dégazage peut grandement aider l'eau à pénétrer dans tous les capillaires qui ont un diamètre plus de 3,06 μm sur les régions périphériques des blocs. Mais après la pénétration d'eau dans les régions externes des blocs, la pression d'air résiduelle dans les vides des régions internes des blocs augmente de plus en plus avec la réduction du volume de vide. L'eau pénètre ainsi de plus en plus lentement dans les capillaires, dû à la réduction du gradient de pression pendant l'imprégnation. D'autre part, le nombre et la distribution de grandeur des fissures créées sont différents dans les spécimens comprimés sous différents taux de déformation. La combinaison de la réduction du gradient de pression avec le temps d'imprégnation et la création de macro-fissures, discutée au chapitre 5, peut bien expliquer ce phénomène. Pour les spécimens comprimés à 34%, l'eau pénètre principalement dans les lumens (20-30 μm) et les micro-fissures. Mais le volume de vide total est probablement réduit après une compression de 34% car la densité augmente tel que montré à la figure 5-5 à la section 5.3. Donc la compression de 34% probablement pourrait améliorer la facilité de pénétration d'eau, autrement dit le degré de pénétration, mais elle ne pourrait pas augmenter la pénétration d'eau total ou la teneur en eau. Les spécimens comprimés à 68% probablement auraient beaucoup de macro-fissures moyennes ($d = 4-10 \mu\text{m}$). Pendant la pénétration d'eau,

l'eau pénètre facilement dans ces fissures sous le gradient de pression d'environ 620 mm Hg. C'est plus évident dans les cas des spécimens comprimés à 85%, car les macro-fissures sont plus grandes.

D'après la pente des courbes, on constate que l'absorption d'eau augmente très peu après 1-2 min, ce qui veut dire que l'augmentation du temps de dégazage au-dessus de 2 min n'améliore pas de façon significative l'absorption d'eau. Du point de vue de l'optimisation, un dégazage d'une minute avant l'imprégnation est suffisant. Le temps de dégazage d'une minute est en effet suffisant pour enlever la majorité de l'air qui est capable d'être dégazée sous ce gradient de pression.

Comparant les résultats des spécimens aux trois taux de compression différents, on constate que les spécimens comprimés à 85% ont absorbé beaucoup plus d'eau que ceux comprimés à 68% et 34%. On peut arriver à la même conclusion selon les observations à partir de MEB, traitées au chapitre 5 : la compression de 34% à 85% augmente de plus en plus le nombre de fissures, qui augmentent le volume de vide et favorisent la pénétration d'eau.

Enfin, à cause de la limitation du gradient de pression de 620 mm Hg, le degré de pénétration pour tous les spécimens ne peut pas atteindre 100% avec un court temps d'imprégnation. Le dégazage réalisé sous le gradient de pression de 620 mm Hg peut enlever la majorité de l'air des pores ou des fissures mais il subsiste toujours de l'air à une pression absolue de 140 mm Hg. Dans ces cas, ce sont les capillaires dans les régions centrales des blocs qui, souvent, n'ont pas bien été pénétrés, parce que le gradient de pression va diminuer continuellement après l'introduction d'eau. Quand le dégazage n'est pas suffisant (pas assez de temps de dégazage et trop bas gradient de pression), moins de capillaires et moins de régions sont remplis immédiatement par l'eau. Cependant, une compression sur les spécimens crée des fissures et modifie les réseaux de passages d'air et d'eau, donc le dégazage et la pénétration sont plus efficaces. Lors de la réalisation de l'imprégnation chimique (voir chapitre 7), on pourra réfléchir à l'impact de ce fait sur la distribution des produits chimiques.

6.2.2 Effet d'une basse compression (34%) sur l'absorption d'eau

Ici, notre but est d'évaluer l'effet d'une compression de 34% par rapport à l'échantillon témoin (sans compression). Pour ce faire, nous avons utilisé le procédé de séchage pour ajuster l'humidité des spécimens comprimés à 34% et les échantillons témoins au même niveau d'humidité. Les échantillons sans compression étaient saturés d'eau. La figure 6-2 montre l'absorption d'eau en fonction du temps de dégazage pour les spécimens dont l'humidité a été ajustée à 39%. Selon une revue bibliographique, l'humidité est un rapport du poids d'eau sur le poids du bois sec, et celle au point de saturation de la fibre est d'environ 30% [8, 9]. Cette teneur en eau à l'humidité de 39% est supérieure au point de saturation de la fibre (~30%).

Dans un but de simplification, comparons d'abord l'absorption d'eau des spécimens comprimés à 34% (l'humidité de 45%) sans ajuster l'humidité (figure 6-1a) et celle de témoins avec un ajustement d'humidité à 39% (figure 6-2a). Il existe seulement une petite différence de densité entre les spécimens correspondants (1-2%), donc on peut les comparer. Il est clair que les teneurs en eau sont semblables pour ces deux sortes de spécimens, mais les absorptions d'eau sont différentes, car les teneurs en eau initiales sont différentes. Donc, les spécimens comprimés à 34% sans ajustement d'humidité ont absorbé moins d'eau par rapport aux échantillons témoins avec un ajustement d'humidité à 39%. Cependant, jusqu'à maintenant on ne peut pas obtenir une conclusion définitive, dû à leur teneur en eau initiale différente.

D'après les micrographies présentées au chapitre 5, une basse compression de 34% déforme principalement la partie du bois de printemps, dû à la faible résistance des fibres de printemps sous compression radiale et un rapport de moins de 50% (en volume) du bois d'été sur le bois total. C'est-à-dire que la compression à 34% a expulsé principalement l'eau des lumens des fibres du bois de printemps pendant la compression. Dans nos essais, la majorité des lumens déformés et dont l'eau a été expulsée sont remplis immédiatement sous un vide 610 mm Hg, atteignant un plateau de 91%, qui est plus que celui (84%) des échantillons témoins séchés à l'air ambiant.

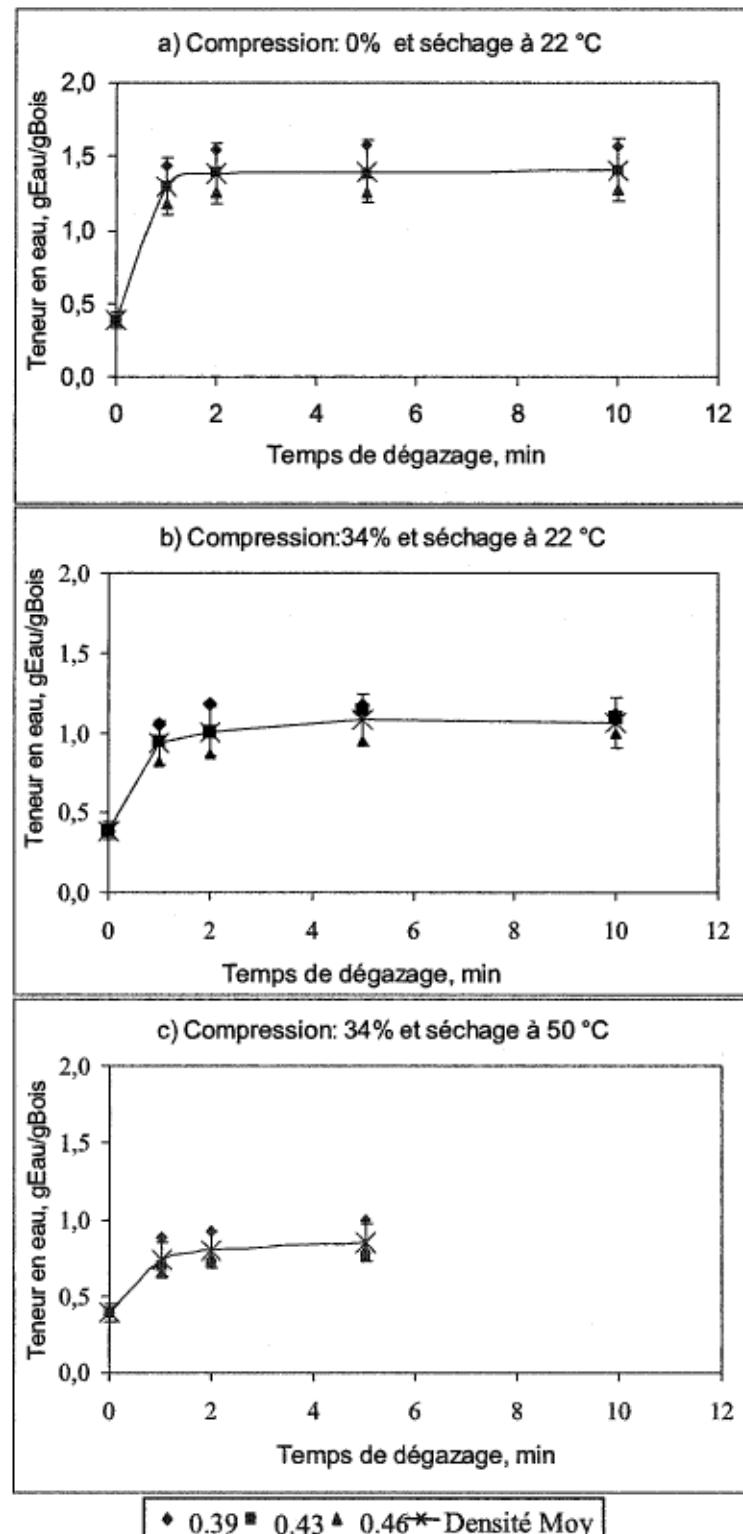


Figure 6-2 Absorption d'eau en fonction du temps de dégazage sous vide (610mm Hg) à 5 min d'imprégnation : a) les témoins séchés à 22°C; b) et c) les spécimens comprimés à 34% et séchés à 22°C et 50 °C, respectivement

Deux phénomènes probables ont lieu pendant le séchage du bois d'une humidité élevée à une en dessous du point de saturation d'eau des fibres. Ce sont la formation de ponctuations aspirées [9] et la formation de liaisons directes entre les molécules des constituants du bois [153], causant ainsi une solidification irréversible. Les ponctuations aspirées sont formées principalement dans le bois de printemps pendant le séchage jusqu'au point de saturation d'eau des fibres [9] et les liaisons formées directement entre les molécules des constituants du bois ont lieu lorsque l'humidité est réduite sous le point de saturation d'eau des fibres [153]. Selon les conditions de séchage dans nos essais, soit une humidité de 150% à 39%, et le point moyen de saturation des fibres (30%), il semble que les ponctuations aspirées se produisent plus souvent et que les liaisons formées directement entre les groupes hydroxyles de la cellulose et de la lignine du bois ont moins de chance de se former, sauf à la surface externe du spécimen qui a probablement moins d'eau qu'à l'intérieur.

Dans nos essais, les échantillons témoins séchés à l'air ambiant ont sombré rapidement au fond du récipient d'essai après l'introduction d'eau (environ 2 min). Cela indique que la majorité de l'air occlus dans les échantillons témoins séchés à l'air ambiant est enlevé par le vide (620 mm Hg). Donc, on dirait que pendant le séchage des échantillons témoins à l'air ambiant (doux), les effets des ponctuations aspirées et des liaisons formées directement entre les molécules des constituants du bois ne sont pas trop importants sur l'absorption d'eau dans le cas de l'imprégnation.

Étant donné que l'humidité des spécimens avant l'imprégnation était de 39% ou plus, l'absorption d'eau est principalement due à la pénétration, car les parois cellulaires sont déjà saturées en eau. Donc, d'après les micrographies présentées au chapitre 5, on conclut que ce sont la déformation des lumens, des parois des fibres (la densification ou la consolidation de la matrice de bois) et la déformation des membranes de ponctuation (facilitant l'aspiration des membranes des ponctuations), qui diminuent l'absorption d'eau dans le cas d'une basse compression. En comparant avec l'absorption maximale d'eau à saturation (voir chapitre 5), on dit que l'effet de la basse compression sur l'absorption d'eau peut être grandement diminué pendant le procédé d'imprégnation prolongée.

Donc, l'absorption d'eau à saturation ne peut pas représenter le cas réel pour analyser l'effet de compression. La basse compression de 34% réduit vraiment l'absorption d'eau, en accord avec la conclusion rapportée sur la densification de la matrice ligneuse [153]. Mais dû à la propriété élastoplastique du bois, le relâchement des fibres déformées prend du temps et dépend des conditions d'humidité et de température.

6.2.3 Effet du procédé de séchage

Dans cette partie du travail, nous comparons des spécimens comprimés à 34% sans séchage (figure 6-1a) à ceux séchés (figure 6-2b) jusqu'à une humidité de 39% avant l'imprégnation. Les résultats nous indiquent qu'après le séchage, les spécimens comprimés à 34% ont une teneur en eau beaucoup moindre. Mais les teneurs en eau initiales sont très différentes (0,75 et 0,39 gEau/gBois, sans et avec ajustement d'humidité, respectivement), donc les absorptions d'eau (teneur en eau finale - teneur en eau initiale) sont semblables.

Pendant les processus expérimentaux, on a cependant observé un phénomène surprenant et intéressant. En effet, les spécimens témoins (figure 6-2a) et les spécimens comprimés à 34% sans ajuster l'humidité (figure 6-1a) se sont déposés au fond du récipient seulement après 2-3 min d'imprégnation, mais ceux comprimés et séchés à l'air ambiant (figure 6-2b) ont flotté pendant le procédé d'imprégnation (5 minutes). Ceci suggère qu'il y a pas mal d'air résiduel restant dans les blocs comprimés à 34% et séchés et que cette partie d'air résiduel était difficilement enlevée par un vide de 620 mm Hg. Il est raisonnable de penser que les passages d'air sont bloqués quelque part dans la matrice du bois. La cause probable envisagée est que les membranes des paires de ponctuations des trachéides sont aspirées en inclinant vers la lèvre de la ponctuation, tout en causant une obstruction de l'orifice par le tore de la membrane [13].

Le relâchement de l'aspiration des ponctuations pouvait être réalisé en imprégnant le bois dans l'eau pour une longue période de temps, par exemple pendant plusieurs semaines [141]. Donc, la teneur maximale en eau peut être atteinte avec une imprégnation prolongée qui pourrait

réduire graduellement l'aspiration des ponctuations [9]. Également, les liaisons formées directement entre les molécules des constituants du bois peuvent être cassées par un étuvage prolongé [26]. En théorie, la ré-adsorption de l'eau jusqu'à l'équilibre original de saturation des fibres peut ainsi être atteinte. Pour confirmer cette déduction, après l'expérience (5 min d'imprégnation), les blocs sont remis dans l'eau et on a observé que la flottaison des blocs durait une journée même sous vide durant l'imprégnation. La flottaison s'est terminée après 2 jours de trempage, et l'absorption d'eau n'atteint pas le maximum par rapport aux spécimens témoins après 2 jours. De ce phénomène, on obtient la même conclusion : le séchage des spécimens humides réduit l'absorption d'eau par la formation des ponctuations aspirées des trachéides.

6.2.4 Effet de combinaison entre compression et séchage

On constate que l'absorption d'eau des témoins séchés à l'air (figure 6-2a) est beaucoup plus élevée que celle des spécimens comprimés à 34% et séchés à l'air à 22 °C (figure 6-2b). Dans nos essais, les témoins étaient séchés à l'air aussi, mais ils se sont déposés au fond du récipient seulement après 2 minutes d'imprégnation. Ce phénomène indique que le séchage à l'air cause un effet à différents degrés sur la formation d'aspiration de ponctuation pour les échantillons témoins et ceux comprimés à 34%. Seulement une faible proportion de l'aspiration des ponctuations se produit pendant le séchage des spécimens témoins à l'air (doux); mais la proportion d'aspiration des ponctuations est beaucoup plus élevée durant le séchage des spécimens comprimés. Ainsi, il existe une interaction très significative entre le séchage et la faible compression pour la formation d'aspiration des ponctuations. La compression à 34% favorise considérablement la formation d'aspiration de ponctuation durant le séchage.

Les ponctuations aspirées sont formées normalement beaucoup plus fréquemment dans le bois de printemps que dans le bois d'été lors du séchage, car la membrane de ponctuations de trachéides du bois de printemps est plus large et plus flexible que celle du bois d'été [154]. La majorité des ponctuations des trachéides se situent sur la paroi radiale des fibres du bois de printemps. Lors du processus de compression, la basse compression de 34% déforme

principalement les parois radiales des fibres de bois de printemps tel qu'observées par MEB et discutées au chapitre 5. Durant le processus de compression radiale, l'eau présente dans les lumens est expulsée du centre du bloc vers l'extérieur des blocs. Puis lors du relâchement, il existe une pression qui pousse l'air vers l'intérieur des blocs par les passages (lumens, ouvertures et fissures). Donc, durant un cycle de compression (6-3a) / décompression (6-3e), il existe plusieurs actions telles que la déformation des lumens et des parois cellulaires (tout en réduisant la cavité de la ponctuation et des membranes de ponctuations) du bois de printemps, la pression d'eau sur les membranes des ponctuations s'avancant de l'intérieur vers l'extérieur (6-3c et d), et la pression d'air sur les membranes de ponctuations progressant de l'extérieur vers l'intérieur (6-3f et g).

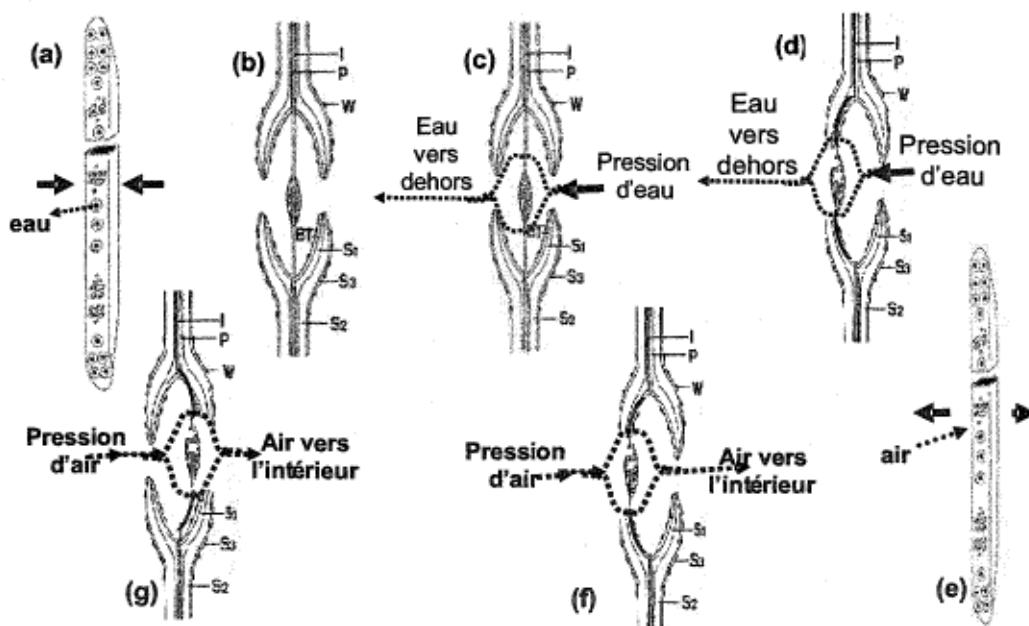


Figure 6-3 Déplacement proposé des membranes de ponctuations aréolées suivant a-c-d-e-f-g pendant un cycle de compression/décompression radiale

Étant donné que les ponctuations sont la seule voie de passage libre entre des fibres voisines pour l'eau, toutes les actions mentionnées ci-dessus pourraient causer un déplacement du tore de la membrane dans la direction tangentielle. Le tore est supporté par des brins (ou mèches) dans la margelle de la membrane de ponctuations, qui sont flexibles, ce qui permet au tore rigide d'être déplacé latéralement. En plus, lors du séchage, le tore se déplace continuellement

par la tension de surface [155] contre une des ouvertures, formant une ponctuation aspirée. Selon le mécanisme de formation d'aspiration de ponctuations [156], la membrane de ponctuation se déplace vers le côté où il y a le plus d'eau, donc vers le côté où le lumen est le plus rempli d'eau. Dans le cas de la compression, le lumen qui a le plus d'eau est bien sûr celui situé vers l'intérieur. Donc l'effet de la compression et le processus de la formation d'aspiration sont en accord. Ainsi, la déformation de la paroi radiale par une basse compression à 34% favorise grandement la formation de ponctuations aspirées. On peut expliquer le phénomène (figure 6-2b) par la combinaison des processus de compression et de séchage à l'air qui étaient utilisés pour les spécimens avant l'imprégnation. Les effets de ces deux processus produisent, sur les spécimens comprimés à 34% et séchés à l'air, une plus grande proportion de paires de ponctuations aspirées, ce qui réduit l'absorption d'eau. Autrement dit, la compression favorise la formation des paires de ponctuations aspirées pendant le processus de séchage des spécimens humides.

6.2.5 Effet de la température de séchage

Pour continuer à faire la preuve de la présence de cette aspiration, on a utilisé une température de séchage élevée pour tester la formation d'aspiration de ponctuations, parce que la littérature rapporte qu'une température élevée [157] favorise la formation d'aspiration de ponctuations.

En comparant les résultats des spécimens comprimés séchés à l'air (22 °C) (figure 6-2b) et ceux séchés par un chauffage à température (figure 6-2c) plus élevée (50 °C), on trouve que les spécimens comprimés et séchés à une température plus élevée absorbent considérablement moins d'eau. Cela indique que la température plus élevée peut augmenter la proportion de paires de ponctuations aspirées, ce qui conduit à la même conclusion publiée [157]. D'après le mécanisme de formation de ponctuations aspirées [140], l'évaporation d'eau aide d'abord à former un ménisque de rayon relativement large dans la cavité de ponctuation. Plus tard, lorsque l'évaporation d'eau a lieu par les petites ouvertures dans la margelle, une forte tension se produit. Cette tension est capable de forcer la membrane vers le lumen rempli d'eau. Le procédé continue jusqu'à ce que la ponctuation soit aspirée. Une température élevée augmente

la vitesse d'évaporation d'eau, résultant en un séchage plus rapide et favorisant la formation de ponctuations aspirées. Ceci confirme encore une fois que l'aspiration des ponctuations, lors du séchage des spécimens humides, résulte en une réduction d'absorption d'eau.

Les résultats de cette expérience nous indiquent la nécessité d'éviter le séchage des copeaux humides pour les espèces de bois résineux qui ont le tore épais comme le pin gris avant le raffinage, parce que le séchage peut causer l'aspiration des paires de ponctuations des trachéides et résulter en une mauvaise imprégnation de produits chimiques.

6.3 Optimisation du procédé d'imprégnation d'eau

À la suite de l'optimisation du temps de dégazage (une minute), un plan factoriel a été utilisé pour évaluer l'effet des variables sur l'absorption d'eau et optimiser le procédé d'imprégnation d'eau.

6.3.1 Effet de la compression radiale sur l'absorption d'eau

L'effet de la compression sur les caractéristiques physiques des blocs est déjà bien discuté dans le chapitre 5. La figure 6-4 montre l'effet de la compression radiale sur la teneur en eau et l'absorption d'eau sous plusieurs conditions d'imprégnation. La teneur en eau inclue deux parties. Ce sont l'eau initiale et l'eau absorbée. La courbe pour zéro minute d'imprégnation (avant imprégnation) est la teneur en eau initiale. Encore une fois, la teneur en eau initiale à basse compression est plus élevée que celle à plus haute compression. Et donc, la teneur en eau initiale diminue dramatiquement au début de la compression pour ensuite diminuer de moins en moins. Les courbes aux temps d'imprégnation de 1 à 20 minutes montrent que la teneur en eau augmente avec l'augmentation du taux de compression radiale. Donc, l'absorption d'eau est la différence entre la teneur en eau des blocs imprégnés et des blocs initiaux (avant imprégnation). Ainsi, l'absorption d'eau augmente de plus en plus avec l'augmentation du taux de compression. Ce phénomène est en accord avec la conclusion présentée au chapitre 5: le nombre et la taille de fissures ont augmenté de plus en plus avec

l'augmentation du taux de compression. Parkinson *et al.* [44] ont fait la compression à l'aide d'une presse à vis à deux taux de compression (3:1 et 5:1, v/v). Ils ont trouvé qu'après l'imprégnation d'eau, l'humidité de 108% (~52% basé sur bois humide) au taux de compression à 1:5 est un peu plus élevée que celle de 104% (~51%) à un taux de compression de 3:1. Mais l'humidité dans nos essais augmente avec l'augmentation de taux de compression radiale, ex. 69%, 117% et 180% en condition de 200 mm Hg et 1 min. Bien sûr, le type de compression et le système d'imprégnation sont tout à fait différents. Les macro-fissures créées ont un effet significatif sur le dégazage et la pénétration. De toute façon, l'augmentation de taux de compression favorise l'absorption d'eau.

De la figure 6-4, on observe aussi que, malgré le fait que la compression radiale crée des macro et micro-fissures, seulement les spécimens comprimés à 85% ont une teneur en eau supérieure à la teneur en eau de l'échantillon témoin saturé, et ce, pour toutes conditions de vide. Cela montre bien l'impact de la compression à taux élevé.

Il est clair que les courbes de la teneur en eau, à chaque graphique, présentée à la figure 6-4, sont presque identiques pour chaque gradient de pression, sauf pour les spécimens comprimés à 34%, à 620 mm Hg. Donc, pour simplifier la figure 6-4, l'effet de compression sur l'absorption d'eau est montré directement à la figure 6-5 pour le cas d'imprégnation de 1 minute sous différents gradients de pression. La différence de teneur en eau pour la compression de 85% est la plus faible parmi les gradients de pression. Ceci indique le changement des passages qui favorisent la pénétration de liquide, et ce fait sera davantage discuté dans une autre partie de cette thèse.

En outre, l'absorption d'eau augmente de plus en plus vite dans tous les cas (figure 6-5). Les formes des courbes sont cependant différentes les unes des autres. Plus précisément, dans le cas d'un dégazage sous vide de 410 et 200 mm Hg, l'absorption d'eau dans le bloc augmente lentement avec l'augmentation de la compression, à partir de 0%, puis de plus en plus vite lorsque le taux de compression passe de 34% à 68% et puis de 68% à 85%.

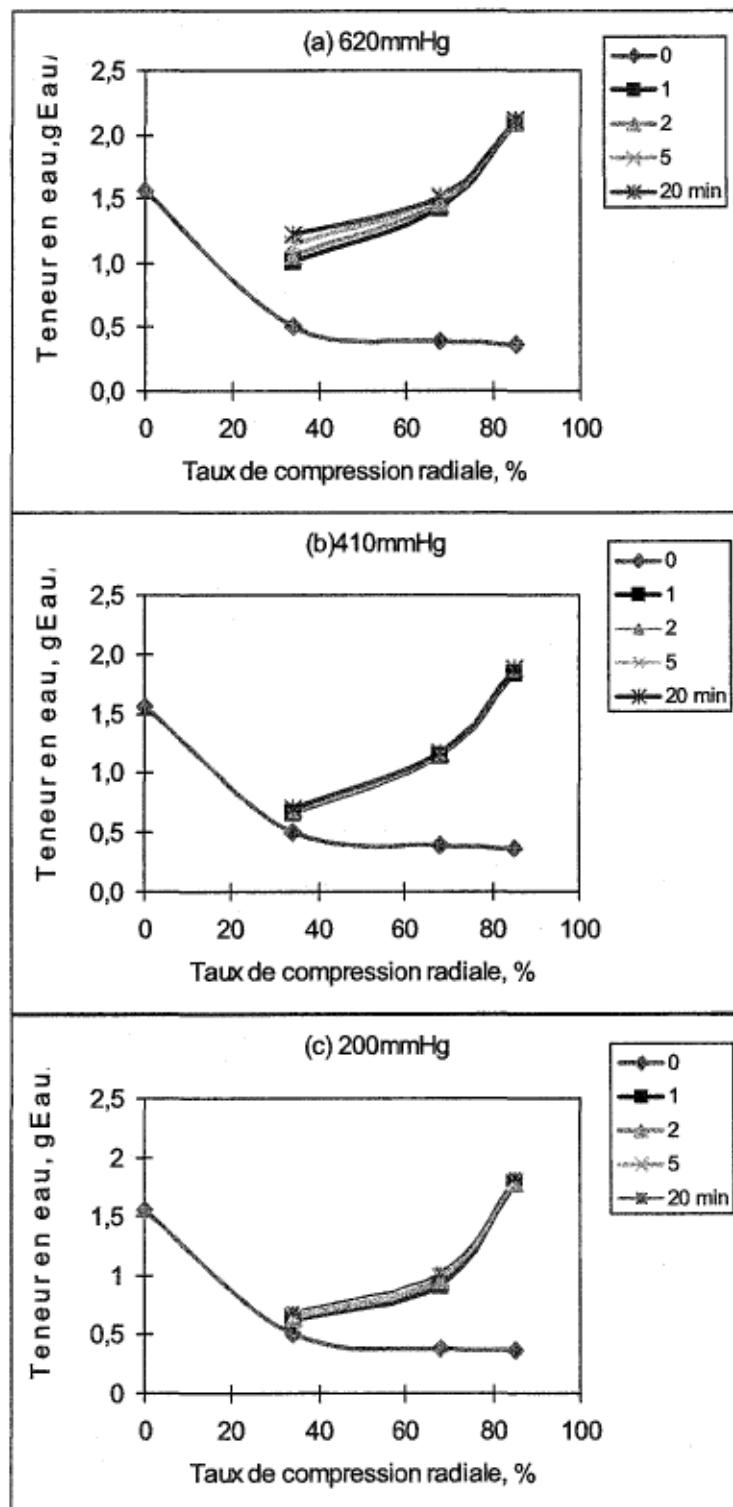


Figure 6-4 Teneur en eau en fonction du taux de compression sous différents gradients de pression, a) 620 mm Hg, b) 410 mm Hg et c) 200 mm Hg

Cependant dans le cas du dégazage sous vide de 620 mm Hg (à puissance haute), l'absorption d'eau augmente rapidement et plus régulièrement de 0% à 68% puis plus brusquement de 68% à 85% de compression. Ces phénomènes vont être discutés avec l'effet du gradient de pression dans la prochaine section. Donc, nos résultats de compression radiale sur l'absorption d'eau sont en accord avec la conclusion - une compression élevée effondre complètement les fibres tout en augmentant de façon significative le volume total des pores [44, 66, 148, 149].

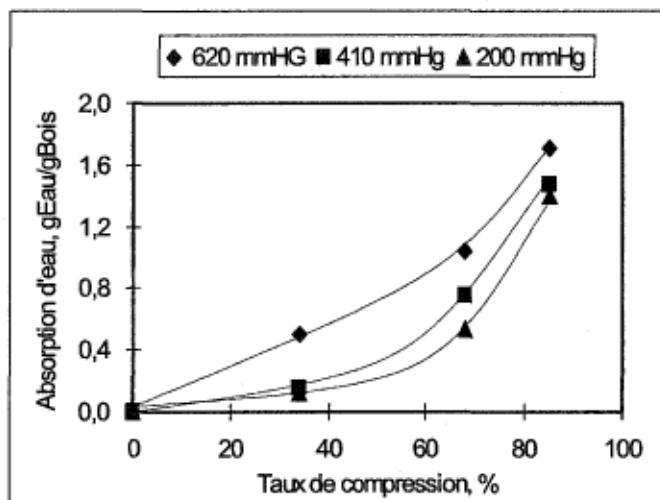


Figure 6-5 Effet de la compression radiale sur l'absorption d'eau à 1 minute en comparant avec les échantillons témoins saturés

Les résultats nous indiquent que la compression augmente le volume de vide et donc augmente l'absorption d'eau par la pénétration. Les résultats de la teneur en eau (figure 6-4) et de l'absorption d'eau (figure 6-5), en fonction du taux de compression, s'accordent avec les observations sur les micrographies obtenues par MEB (voir chapitre 5): la compression plus forte est plus efficace pour la création de macro-fissures.

6.3.2 Effet du gradient de pression (sous vide)

L'optimisation des conditions ambiantes, comme la pression, peut être utilisée comme outil pour augmenter la pénétration de liquide. L'effet principal du gradient de pression sur la pénétration de liquide est d'augmenter la vitesse de pénétration et de réduire le temps

d'imprégnation. Les résultats présentés à la figure 6-6 montrent l'effet général du gradient de pression sur la teneur d'eau dans le procédé d'imprégnation. Il est évident que l'effet du gradient de pression sur la teneur en eau est semblable pour les différents temps d'imprégnation. C'est que la teneur en eau augmente en général avec l'augmentation du gradient de pression pour tous les spécimens.

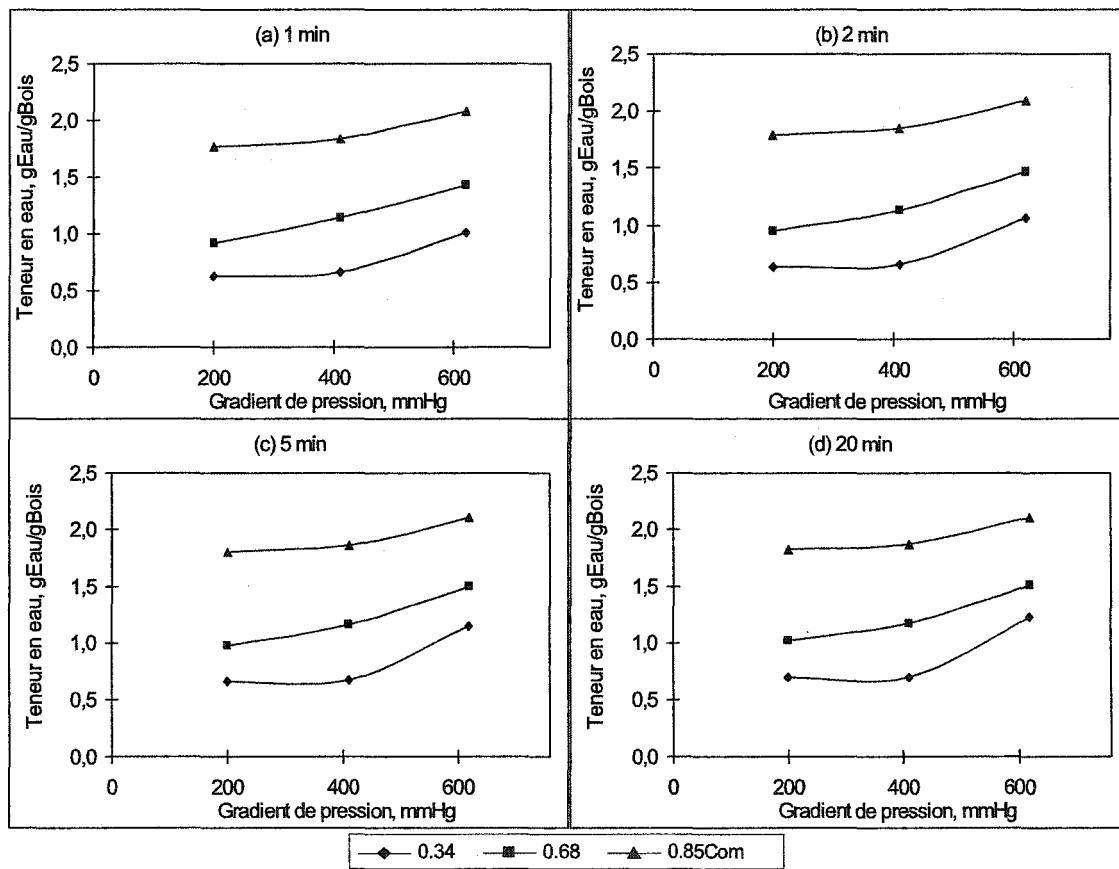


Figure 6-6 Effet du gradient de pression sur la teneur en eau : (a) 1 min, (b) 2 min, (c) 5 min, et (d) 10 min

L'effet du gradient de pression sur l'absorption d'eau à 1 min est illustré à la figure 6-7 pour être bien vu et discuté. Les formes des courbes sont évidemment différentes entre les spécimens comprimés aux différents taux de compression. L'absorption d'eau augmente avec le taux de compression.

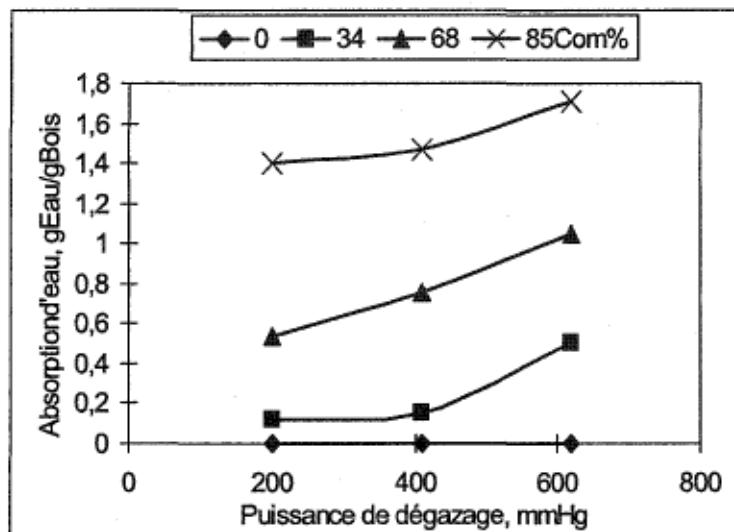


Figure 6-7 Effet du gradient de pression sur l'absorption d'eau en 1 min

En général, l'absorption d'eau dépend principalement du gradient de pression qui est la force de pénétration. Donc c'est le degré de dégazage dans les spécimens qui est le plus important pour aider la pénétration d'eau dans le spécimen. Il dépend de la puissance de dégazage, du temps du dégazage, de la grandeur des passages ainsi que des réseaux de passage d'air ou de liquide. Quand le liquide est introduit dans le système dégazé, on remarque que le temps pour introduire une même quantité d'eau est très différent pour les différentes puissances de dégazage. Ils sont d'environ 4, 12, et 30 secondes pour les puissances de dégazage de 620 mm Hg, 410 mm Hg et 200 mm Hg, respectivement. De plus, pour une puissance plus faible de dégazage telle que 200 mm Hg, on a observé que la quantité d'eau introduite dans le système sous vide est de 60 mL; après, il faut ouvrir le système pour ajouter le reste de l'eau (40 mL). Cette observation nous porte à croire que l'efficacité du dégazage dépend principalement de la puissance de dégazage.

Des essais ont été réalisés pour optimiser le temps de dégazage sous le gradient de pression de 620 mm Hg, mais nous n'avons pas optimisé le temps de dégazage sous vide de 410 et 200 mm Hg. Basé sur la comparaison entre les différents gradients de pression pour évaluer l'effet du vide, on a fixé le temps de dégazage à 1 minute. Pour le spécimen comprimé à 34%, la pente de la courbe d'absorption d'eau est presque à zéro pour le gradient de pression variant

de 200 mm Hg à 410 mm Hg. L'augmentation de la puissance de dégazage de 200 mm Hg à 410 mm Hg influence très peu l'absorption d'eau dans les spécimens comprimés à 34%. Ainsi, c'est la combinaison de la puissance de vide, le volume de vide dans les spécimens, la condition de passages et de réseaux de passage qui contrôlent la vitesse du dégazage et le niveau de dégazage. Les spécimens comprimés à 34% ont leurs passages presque identiques à ceux des échantillons témoins. L'équation de Jurins ($\Delta P = 2\sigma \cos \theta / r$) permet d'expliquer comment le dégazage aide la pénétration d'eau. Dans l'échantillon comprimé à 34%, les plus grands pores sont les lumens des trachéides (20-30 μm). Le dégazage sous vide à plus forte puissance a enlevé plus d'air et a un impact plus significatif sur la pénétration de liquide. Selon la loi de Jurins, le lumen des trachéides produit une pression capillaire d'environ 58-87 mm Hg. Dans ce cas, le dégazage en puissance de 200, 410 et 620 mm Hg peut favoriser l'augmentation de la pression capillaire des lumens. Mais, l'air occlus va être comprimé lorsque l'eau pénétrera, et donc le gradient de pression va diminuer.

Cependant, le plus petit capillaire produit la plus grande pression capillaire, ainsi que le plus grand gradient de pression. S'il y a des micro-fissures qui se produisent sous la compression de 34% et si le diamètre des micro-fissures est de 2 μm , la pression capillaire sera d'environ 584 mm Hg. L'eau pénètre facilement dans des petits capillaires lorsqu'il y a une possibilité (un bout du petit capillaire touche à l'eau), par exemple dans les régions périphériques des spécimens. Mais des micro-fissures ne contribuent que très peu sur le volume de vide; et pour des petits capillaires dans les régions internes, la pénétration dépend de la situation de remplacement d'eau par de gros passages qui permettent de connecter les capillaires au réseau (macro-fissures ou lumens). L'absorption d'eau des spécimens comprimés à 34% augmente brusquement lorsque le gradient de pression passe de 410 mm Hg à 620 mm Hg. Ce phénomène peut être expliqué en deux parties. D'abord le dégazage sous vide de 620 mm Hg enlève plus d'air dans la région centrale du bloc. L'eau peut pénétrer plus profondément vers le centre et, de plus, plus de micro-fissures touchent l'eau à cause du grand gradient de pression comparativement avec la faible puissance de dégazage.

Mais, sous une variation de puissance de dégazage de 200 mm Hg à 410 mm Hg, l'absorption d'eau pour les spécimens comprimés à 68% augmente plus rapidement que ceux comprimés à 34% et 85%. Le dégazage à une puissance de 200 mm Hg pourrait légèrement favoriser la pénétration d'eau dans les lumens et les plus grosses macro-fissures, de 4-10 μm , car la pression capillaire sera d'environ 292-117 mm Hg. Donc, on peut déduire qu'une compression moyenne de 68% crée considérablement de macro-fissures de moyennes tailles. Pour la même raison, le dégazage à une puissance de 410 mm Hg peut considérablement aider la pénétration d'eau dans toutes les grosses macro-fissures créées. Cependant le dégazage à 620 mm Hg peut aider l'eau à pénétrer dans les macro-fissures de petites tailles (3-4 μm) et plus profondément, dû à sa grande résistance contre l'augmentation de pression de l'air comprimée. De plus, il ne faut pas oublier l'effet de l'amélioration des réseaux, qui contrôlent les voies de pénétration. Quand les réseaux sont trop longs et étroits, le dégazage n'est pas efficace et la pénétration est plus difficile.

Une forte compression de 85% crée beaucoup de macro-fissures de grandes tailles et aussi rompt les membranes des ponctuations (diamètre d'ouverture : 0,04 μm) lorsque les macro-fissures se produisent. Dans ce cas, le dégazage est plus efficace dans les régions centrales dû à la grande modification du passage des ponctuations qui s'élargit de 0,04 μm (ouverture des membranes) à $\sim 3 \mu\text{m}$ (orifice) [9]) et des passages entre des fibres voisines (inter-fibre). L'absorption d'eau des spécimens comprimés à 85% est tellement élevée sous un bas gradient de pression de 200 mm Hg, qu'on déduit que la compression à 85% crée beaucoup de grandes macro-fissures et qu'ainsi l'eau pénètre facilement dans ces conditions. Quand le gradient de pression augmente de 200 mm Hg à 410 mm Hg, l'absorption d'eau des spécimens comprimés à 85% augmente seulement un peu. C'est-à-dire que l'effet de dégazage pour une puissance de 410 mm Hg dans le cas des spécimens comprimés à 85% est justement un peu plus que celui de 200 mm Hg. Le dégazage à une puissance de 410 mm Hg favorise la pénétration dans les fissures de plus de 5 μm ainsi que celles plus profondes. On constate que la forte compression crée relativement moins de moyennes macro-fissures (5 μm). Mais quand le gradient de pression augmente de 410 mm Hg à 620 mm Hg, l'absorption d'eau augmente plus vite, indiquant la puissance du gradient de pression. Le dégazage à une puissance de 620 mm Hg

pourrait aider l'eau à pénétrer dans les moyennes macro-fissures plus petites que 3 μm . Selon la relation entre le volume et le rayon des pores, on sait que les grandes macro-fissures contribuent au volume en fonction du carré du rayon des fissures.

En tous cas, le dégazage à une puissance de 200 mm Hg pourrait favoriser la pénétration d'eau entre les pores ou fissures qui sont plus grands que 9 μm . Pour la même raison, les dégazages à une puissance de 410 ou 620 mm Hg pourraient faciliter la pénétration de l'eau dans les pores ou les fissures de plus de 5 μm et 3 μm , respectivement. Mais pendant l'imprégnation, le gradient de pression varie et diminue avec la pénétration de l'eau. Les réseaux de passage de liquide sont aussi très importants pour la pénétration de l'eau.

6.3.3 Effet du temps

L'optimisation du temps d'imprégnation dépend d'autres conditions du procédé. Un temps d'imprégnation court est idéal pour augmenter l'efficacité de production de façon économique. La figure 6-8 montre l'effet du temps d'imprégnation sous vide sur l'absorption d'eau pour les blocs comprimés. Une comparaison des procédés sous différents gradients de pression (figure 6-8a, b et c) révèle que les tendances pour la pénétration de la liqueur sont généralement semblables parmi les différents procédés.

Selon la pente des courbes, la pénétration se déroule en deux étapes durant le procédé d'imprégnation. Au début, soit durant la première minute, la pénétration initiale augmente drastiquement et de façon linéaire. Puis elle n'augmente presque plus pour finalement atteindre un plateau. Autrement dit, un temps d'une minute est suffisant pour profiter du gradient de pression qui existe dans les spécimens sous vide avant l'imprégnation dans l'eau. Après le dégazage, la plupart des capillaires (lumens, macro-fissures) dans les régions périphériques sont remplis immédiatement par l'eau. C'est-à-dire que l'effet du gradient de pression est très significatif au temps d'une minute sur tous les spécimens comprimés aux différents taux de compression.

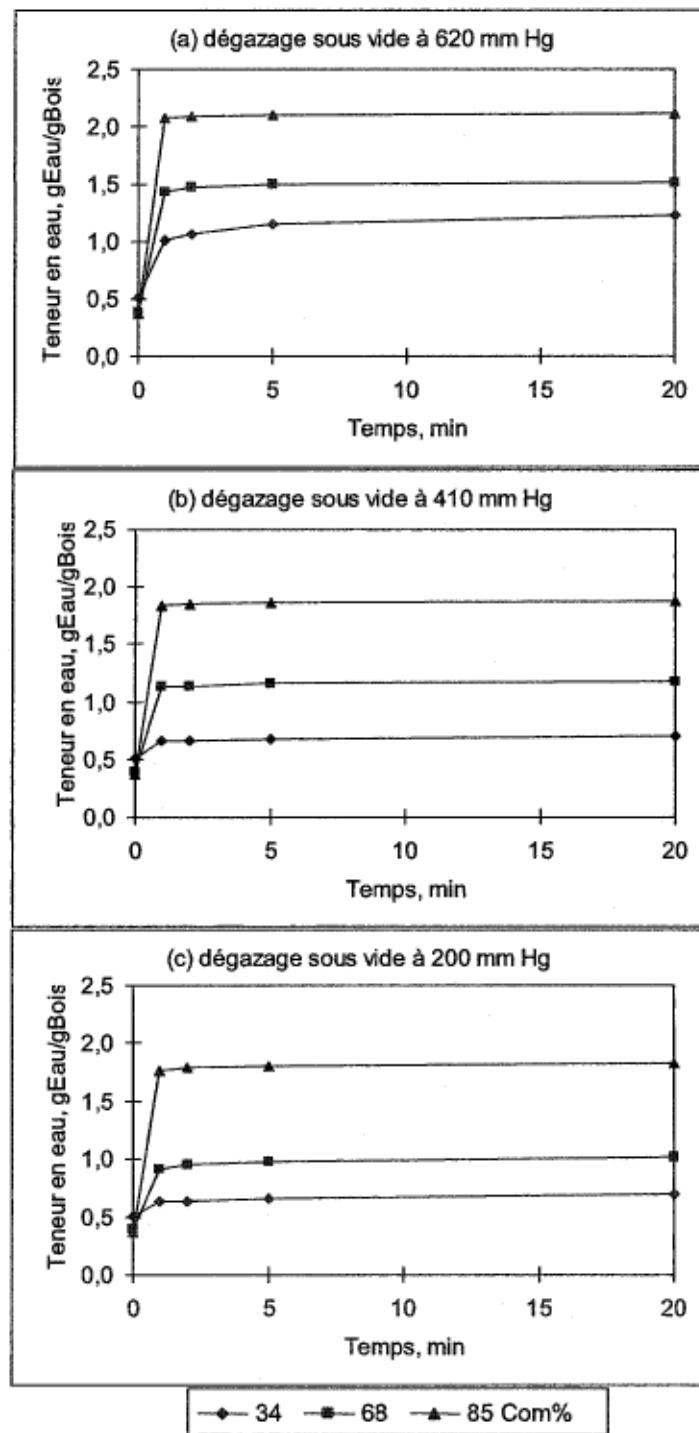


Figure 6-8 Effet du temps d'imprégnation sur la teneur en eau (densité moyenne : 0,43 g/cm³)

Si l'on utilise le terme de degré de pénétration, on doit connaître la densité des spécimens comprimés. Les densités moyennes des spécimens comprimés sont, respectivement, 0,44, 0,42

et $0,37 \text{ g/cm}^3$ pour 34%, 68% et 85% de compression (voir chapitre 5) pour la densité moyenne de $0,43 \text{ g/cm}^3$. On peut calculer le degré de pénétration d'eau à partir de la teneur en eau après cette équation : $DP = Te / (1/D_b - 1/D_s)$, où Te = Teneur en eau, D_b = Densité du bois sec, D_s = densité de solide (composant chimique).

La teneur en eau est une valeur absolue tandis que le degré de pénétration d'eau est une valeur relative. Donc on peut l'utiliser pour juger du niveau d'absorption d'eau lorsqu'un plateau est atteint. Sous un gradient de pression de 200 mm Hg, les degrés de pénétration maximaux sont 43%, 54% et 78% pour les compressions à 34%, 68% et 85%, respectivement. Sous ce faible dégazage, plus de la moitié du volume des pores ne peut être rempli d'eau dans les spécimens comprimés à 34%. Avec l'augmentation du taux de compression, le degré de pénétration augmente de plus en plus. Pour les spécimens comprimés à 85%, la majorité des pores (78%) sont remplis d'eau sous ce bas gradient de pression.

Sous un gradient de pression de 410 mm Hg, les degrés de pénétration maximaux sont 43%, 65% et 80% pour les compressions de 34%, 68% et 85%, respectivement. En comparant les résultats obtenus avec la plus basse puissance de dégazage, on constate que, sous le gradient de pression moyen (410 mm Hg), le degré de pénétration des spécimens comprimés à 68% augmente plus. Cependant, le degré de pénétration des spécimens comprimés à 34% et 85% n'augmente pas du tout ou très peu. Donc le dégazage à une puissance de 410 mm Hg n'a pas plus d'effet que celui de 200 mm Hg pour les spécimens comprimés à 34%, démontrant qu'il n'y aurait pas de fissures dans la plage de 4-9 μm telles qu'observées au chapitre 5.

La teneur maximale en eau (en atteignant le plateau), sous le dégazage à une grande puissance de 620 mm Hg durant 1 minute, est 73%, 81% et 91% pour 34%, 68% et 85% de compression, respectivement. Ceci montre que le dégazage à cette grande puissance est plus important pour les spécimens comprimés à 34%. De 200 mm Hg à 620 mm Hg, le degré de pénétration augmente de 30% (de 43% à 73%) pour les spécimens comprimés à 34%, ce qui est plus grand que ceux des spécimens comprimés à 68% et 85%.

Pour obtenir le degré de pénétration d'environ 70% dans l'aubier de pin, on a besoin de 60 min d'imprégnation sous une haute pression (2 bar), même si la dimension du bloc est petit ($8 \times 15 \times 25$) et la teneur en eau initiale est de 0,54 gEau/gBois sec (54%) [73]. Pour les blocs ($5 \times 5 \times 20$) de l'aubier de *Pinus sylvestris* qui étaient séchés au four pendant 3 heures à 100°C, dégazés ensuite pour 30 min, puis flottés sur la surface de liquide, la pénétration de liquide augmente durant presque 15–20 min [93]. Donc, en comparant les deux méthodes mentionnées ci-dessus, on peut obtenir les deux conclusions suivantes : le dégazage des spécimens avant l'imprégnation est très efficace sur la réduction de temps d'imprégnation; et les spécimens séchés ne sont pas favorables pour la pénétration du bois résineux, car le séchage peut causer l'aspiration des ponctuations et en plus les spécimens séchés ont besoin de suffisamment de temps pour la diffusion de l'eau dans les parois des fibres et ensuite pour leur gonflement.

Les réseaux de passages avant et après une compression relativement élevée sont illustrés à la figure 6-9. Les réseaux de passages de blocs témoins (figure 6-9a) sont très longs (lumen ouvert au 1^{er} rang au bord du bloc → paires de ponctuations sur la paroi radiale → lumen de 2^{ème} rang → paires de ponctuations → lumen de 3^{ème} rang..... → vers le centre du bloc) et sont contrôlés surtout par les ponctuations des trachéides. Le gradient de pression élevé a une plus grande puissance pour enlever l'air à l'intérieur du bloc. Les réseaux de passage pour les spécimens comprimés à 34% sont modifiés un peu (la création de micro-fissures et la déformation des lumens, des parois et des ponctuations des fibres). Le spécimen comprimé à 34% a vraiment besoin de l'aide d'un gradient de pression élevé pour réaliser une bonne pénétration dans un court temps.

Le tableau 6-2 montre les volumes de vide résiduel (cm^3/g) après l'imprégnation. En comparant les volumes de vide résiduel parmi les spécimens comprimés aux différents taux de compression, on peut trouver que le volume résiduel des pores est de plus en plus faible avec l'augmentation du taux de compression sous un même gradient de pression. On peut déduire que la compression crée principalement des fissures pour augmenter le volume des pores. En même temps, elle modifie et améliore les réseaux de passages de pénétration. C'est-à-dire que

la compression plus élevée est plus efficace en favorisant le dégazage de la région centrale du bloc.

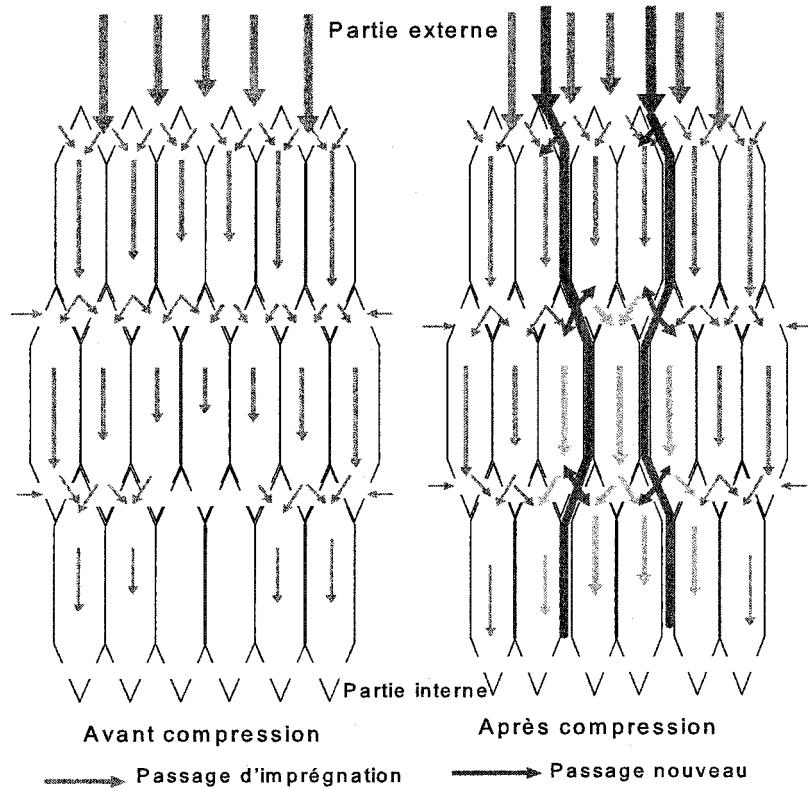


Figure 6-9 Réseaux de passages avant [9] et après une compression relativement élevée

La compression plus élevée crée plus de macro-fissures et leurs longueurs peuvent être de beaucoup supérieures à celles des lumens des trachéides. L'eau peut pénétrer dans la région centrale par les macro-fissures créées par compression et par la suite par les ponctuations sans membrane entre les lumens voisins. Autrement dit, la compression élevée peut ouvrir des passages supplémentaires entre des fibres voisines près de la lamelle mitoyenne composée et ainsi agrandir une partie des passages critiques. En plus, les macro-fissures créées ont changé les réseaux de passages de l'eau. Elles amènent l'eau directement vers la région centrale et puis, presque simultanément, aident l'eau à pénétrer vers des fibres voisines par des paires de ponctuations sans membrane. En tous cas, la compression élevée a modifié, coupé et amélioré les réseaux de passages. Finalement, on propose qu'une forte compression change les réseaux de passages tels qu'illustrés à la figure 6-9b. Mais après une compression radiale, les réseaux

de passage, principalement dans la direction radiale, sont changés de plus en plus avec l'augmentation du taux de compression tels qu'illustrés à la figure 6-10 : (a) compression faible et (b) compression élevée.

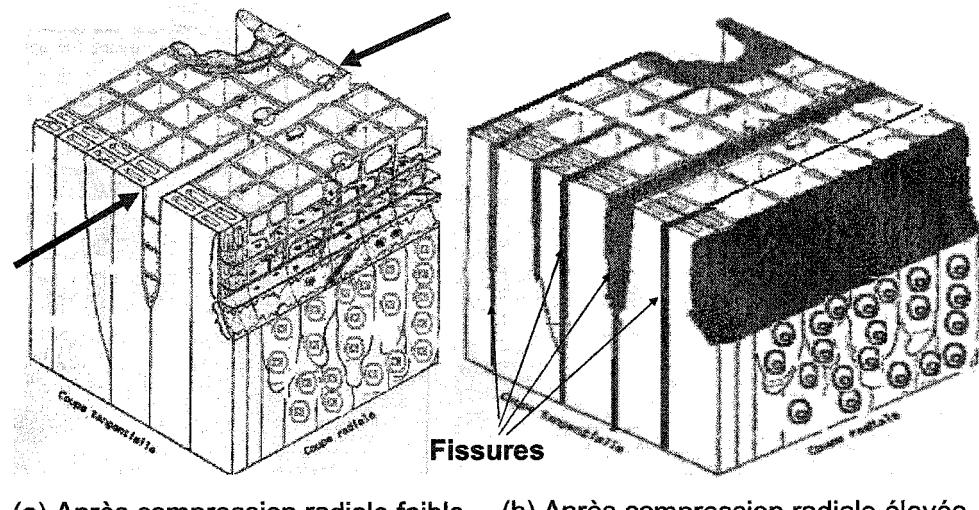


Figure 6-10 Effet de la compression sur la création des fissures et l'amélioration des réseaux de passage de pénétration

Les fissures créées dans la direction radiale augmentent grandement la pénétrabilité du spécimen comprimé dans cette direction (figure 6-10b), lors d'une compression radiale élevée.

Tableau 6-2 Volume de vide résiduel après l'imprégnation

$V_{\text{vide résiduel}} (\text{cm}^3/\text{g}) = (1-\text{DP}) \times V_{\text{vide total}} (\text{cm}^3/\text{g}) = (1-\text{DP}) \times (1,5 \times D) / (1,5 - \text{D})$				
Spécimens Comprimés (%) à	D (g/cm ³)	Gradient de pression (mm Hg)	DP %	V _{vide résiduel} (cm ³ /g)
34%	0,435	620	73	0,17
68%	0,42	620	81	0,11
85%	0,37	620	91	0,04
34%	0,435	410	43	0,35
68%	0,42	410	65	0,20
85%	0,37	410	78	0,11
34%	0,435	200	43	0,35
68%	0,42	200	54	0,27
85%	0,37	200	78	0,11

En résumé, dans nos essais, la loi de Jurins peut bien expliquer la relation entre la puissance de dégazage et la grandeur des pores et leurs influences sur l'absorption d'eau aux différentes conditions d'imprégnation. La puissance de dégazage augmente seulement la vitesse de pénétration. Un dégazage à une grande puissance favorise la pénétration d'eau dans les régions plus profondes des blocs. Donc, l'effet de la puissance de dégazage est de plus en plus grand avec l'augmentation de sa magnitude.

Une compression moins élevée que 34% ne peut pas augmenter le volume de vide total. L'effet de compression radiale de 0% à 34% est légèrement négatif pour l'absorption d'eau; il augmente lentement de 34% à 68% puis de plus en plus vite de 68% à 85%. L'effet interactif de la compression et du gradient de pression est de plus en plus grand lors de l'augmentation de compression et de gradient de pression. Dans nos processus d'imprégnation, le temps est une variable moins importante, parce que l'absorption d'eau atteint très vite un plateau, ensuite elle n'augmente plus avec le temps d'imprégnation. Quand l'eau pénètre dans le vide des blocs, de l'air se trouve bloqué à l'intérieur. Lorsque plus d'eau pénètre, le volume de vide diminue continuellement et la pression d'air résiduel augmente proportionnellement. Quand la pression d'air résiduel est égale à la pression extérieure (la somme de la pression atmosphérique et de la pression hydraulique-statique), on dit qu'à ce moment le système d'imprégnation est arrivé à l'équilibre. Quand la pression d'air résiduel est un peu plus que celle de l'extérieure, la théorie d'équilibre indique que l'air comprimé va sortir peu à peu sous forme de petites bulles. Puis la pression d'air résiduel étant un peu moindre, un nouveau processus va recommencer. L'eau peut entrer un peu, ensuite la pression d'air augmente jusqu'au nouveau point d'équilibre avec la pression extérieure, un peu de bulles d'air sortent et diffusent. Ainsi la vitesse de pénétration a été graduellement réduite avec le temps dans tous les procédés d'imprégnation. Un temps très long sera requis pour faire disparaître tout l'air, à la température ambiante et à pression atmosphérique, selon ce principe. Il est rapporté [93] qu'à cause de la présence de l'air capturé dans les blocs, la densité des blocs imprégnés (un rapport du poids total sur le volume du bloc) augmente jusqu'à $0,7 \text{ g/cm}^3$ pendant une imprégnation de 15 jours dans l'eau. Somme toute, les conditions optimales pour la pénétration d'eau dans les

blocs sont le gradient de pression de 620 mm Hg, une compression radiale de 85% et un temps d'une minute.

6.4 Conclusions

En analysant les résultats des essais sur la pénétration d'eau au cours de l'imprégnation des blocs de pin gris, on peut arriver aux conclusions suivantes.

- 1) Dans nos processus de dégazage, le système (150 mL) contenant des spécimens est dégazé à une puissance de 620 mm Hg durant une minute, ce temps est suffisant pour enlever la majorité de l'air dans les pores.
- 2) Le séchage du bois peut causer la formation d'aspiration des membranes des paires de ponctuations, ce qui diminue la pénétrabilité des blocs. Une faible compression favorise la formation d'aspiration de ponctuations pendant le séchage subséquent. Il existe un effet synergique très grand entre la faible compression et le séchage sur l'aspiration de ponctuation. Une température plus élevée pendant le séchage après une compression favorise la formation de ponctuations aspirées. La proportion des paires de ponctuations aspirées produites varie avec les conditions de séchage telles que la température et la vitesse d'évaporation d'eau.
- 3) La compression radiale est une variable très importante et intéressante pour la pénétration de la liqueur. Une compression de 0 à 34%, est insuffisante pour favoriser la pénétration initiale. La compression peut augmenter la quantité de volume de vide et peut aussi améliorer la vitesse d'absorption d'eau sous le même gradient de pression. Par conséquent, l'absorption d'eau augmente de plus en plus avec l'augmentation de la compression. Une forte compression améliore les réseaux de passage pour surmonter la difficulté de la pénétration dans les régions centrales des spécimens.

- 4) Le gradient de pression est le facteur principal pour améliorer la vitesse d'absorption d'eau et diminuer grandement le temps d'imprégnation.
- 5) L'absorption d'eau des blocs est contrôlée principalement par le taux de compression et le gradient de pression. Un gradient élevé est plus important pour les spécimens comprimés à faible compression que ceux comprimés à forte compression. Une interaction forte existe entre la compression radiale et le gradient de pression. Elle favorise l'absorption d'eau dans les macro et micro-fissures plus profondes au centre des spécimens.
- 6) Dans les procédés où des spécimens sous vide sont ensuite imprégnés d'eau, l'absorption atteint un plateau en seulement une minute. Ainsi, le temps n'est pas un facteur important sur l'absorption d'eau dans nos procédés d'imprégnation.
- 7) Les conditions d'imprégnation d'eau optimale dans nos procédés pour atteindre l'absorption d'eau maximale sont: 85% de compression radiale, dégazage à une haute puissance de 620 mm Hg et un temps de 1 minute.

Chapitre 7 - RÉSULTATS ET DISCUSSIONS – PARTIE III : IMPRÉGNATION DANS NaOH à 3%

L'effet de la compression et du gradient de pression sur l'absorption d'eau est déjà discuté au chapitre 6. L'absorption d'eau est principalement contrôlée par le mécanisme de pénétration. Dans ce chapitre, nous analysons et discutons l'effet des diverses variables pour l'imprégnation de blocs dans la liqueur de NaOH à 3%.

7.1 Absorption de la liqueur chimique

Dans cette section, nous allons évaluer l'effet de diverses variables incluant la température sur l'absorption de la liqueur de NaOH à 3%. Les diverses conditions d'imprégnation étudiées sont la température, le taux de compression, le gradient de pression, la viscosité de liquide/liqueur et le produit chimique (NaOH).

7.1.1 Effet de la compression radiale

La figure 7-1 montre l'effet de la compression radiale sur l'absorption de la liqueur chimique (NaOH à 3%). On observe que les spécimens dégazés et ceux sans dégazage se comportent différemment. Avec un dégazage sous vide de 610 mm Hg (Figure 7-1a, b, c), l'absorption de la liqueur a augmenté de plus en plus vite avec l'augmentation de la compression radiale au début du processus (au temps court). Après un certain temps d'imprégnation, l'effet de la compression radiale augmente de plus en plus lentement. Après une imprégnation d'une minute à 60°C, les absorptions de la liqueur sont de 0,64, 0,9 et 1,2 g liqueur/g bois sec pour la compression de 0%, 34% et 68%, respectivement. Ainsi avec le dégazage sous vide de 610 mm Hg, l'absorption de la liqueur à 68% de compression est plus élevée que celle à 34% de compression qui est plus haute que pour les blocs non comprimés. Il est à remarquer que, pour les spécimens comprimés à 68%, les absorptions de NaOH à 3% sont pratiquement indépendantes du temps d'imprégnation. Donc, une forte compression a un effet très

significatif, car elle peut réduire le temps d'imprégnation. On discutera l'effet d'un dégazage poussé à la section 7.1.2.

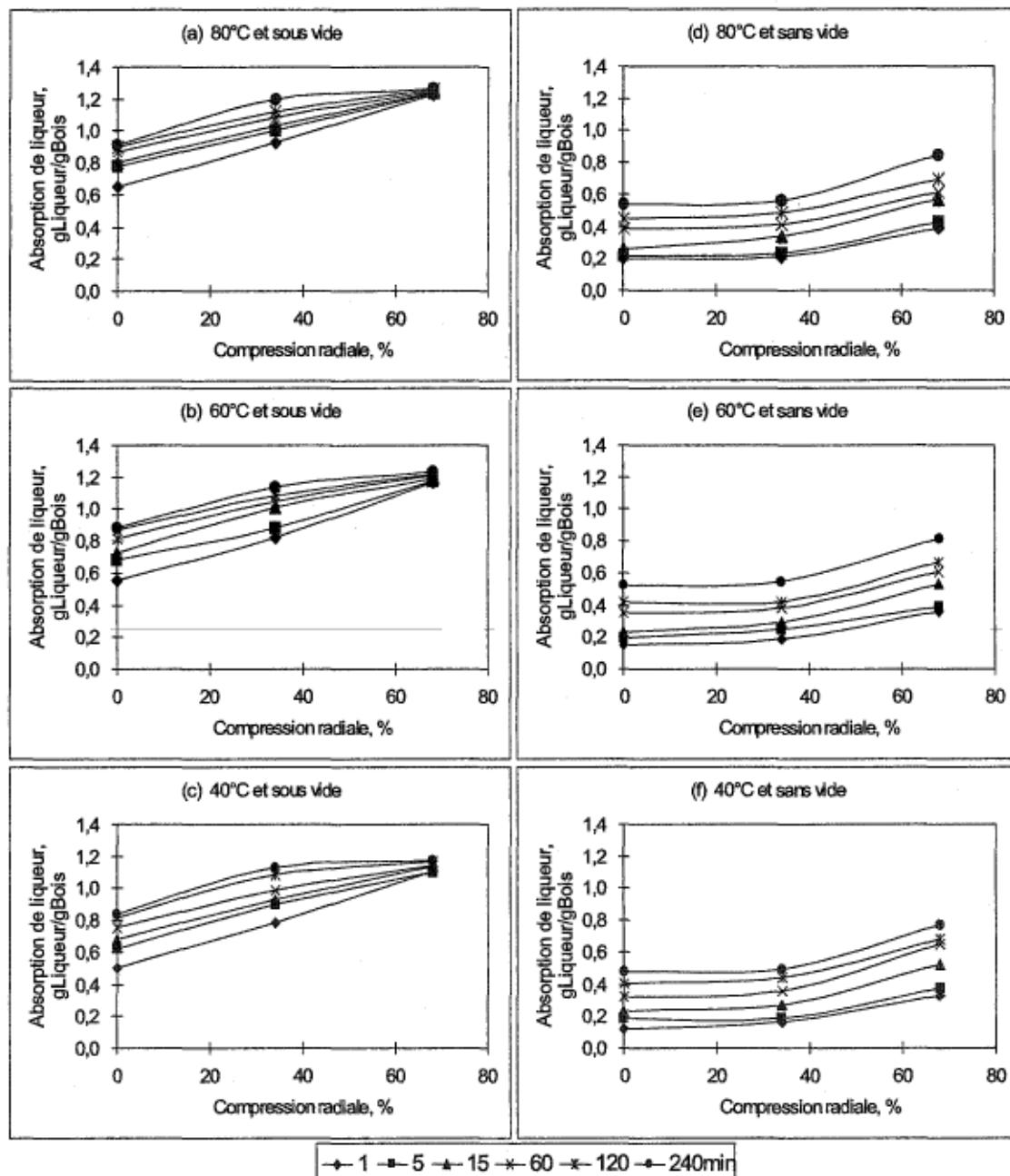


Figure 7-1 Effet de la compression radiale sur l'absorption de liquide chimique (NaOH à 3%)

Cependant, pour les spécimens sans dégazage il est clair que les processus d'imprégnation (figure 7-1d, e et f) se sont déroulés en deux étapes tel qu'il est démontré sur les courbes. Durant la première étape, lorsque la compression radiale est de moins de 34%, l'absorption de liqueur augmente seulement un peu. Dans ce cas, l'effet d'une compression de 34% sur l'absorption de la liqueur de NaOH à 3% existe et est légèrement positif. Ces observations sont différentes des résultats pour l'absorption d'eau telle que discutée dans les sections 5.5. et 6.2. On peut expliquer cela par la différence des conditions de traitement des spécimens montrés aux tableaux 4-2 et 4-3, des procédés et des natures des liquide/liqueur (eau/3%NaOH). La compression faible déforme principalement les lumens et par conséquent, elle réduit un peu le volume de vide des blocs. Les spécimens comprimés sont séchés tout de suite après un cycle de compression/ décompression et l'humidité est ajustée jusqu'à 39%, telle qu'illustre au tableau 6-1 et à la figure 6-2 du chapitre 6. En plus, le temps d'équilibre était seulement de 2 jours. Cependant, dans ce chapitre, après compression les spécimens sont mis tout de suite dans un sac plastique pour éviter l'évaporation. Quand tous les spécimens ont été comprimés, on a commencé le processus de séchage pour ajuster l'humidité à la valeur prédéterminée (39%). Cela a pris presque deux journées pour compléter la compression radiale. Puis tous les spécimens ont été mis dans un sac plastique pour une soirée (15 heures). L'ajustement d'humidité a été faite durant les journées suivantes. L'ajustement d'humidité ne se fait pas tout de suite après la compression et l'équilibre est plus long à atteindre (plus de 21 jours), ce qui favorise le relâchement de la déformation avec le temps prolongé. Le stress dans la région du plateau est diminué avec l'augmentation de la température et de la teneur en eau [56]. Les spécimens sont réchauffés à 40-80°C durant 20 min avant l'imprégnation dans NaOH à 3% chaud. Cette période de réchauffage peut quand même aider beaucoup le relâchement des blocs comprimés. La liqueur de NaOH à 3% a un effet de dissolution des matières extractibles, ce qui favorise l'augmentation des ouvertures des membranes de ponctuations et aussi le gonflement des parois de fibres. Puis le trempage de spécimens comprimés dans NaOH à 3% chaud peut aussi favoriser la récupération de la forme des fibres et des blocs par l'humidité, la chaleur et le gonflement. Toutes ces raisons supportent la récupération du volume de vide.

En deuxième étape, tel que montré aux figures 7-1d, e et f, l'absorption de la liqueur croît lentement et linéairement quand la compression radiale dépasse environ 50%. Ceci pourrait expliquer que la compression de 34% a seulement produit des micro-fissures qui sont petites, donc très peu de volume de vide, donc elle ne peut pas favoriser grandement la pénétration de la liqueur pour les spécimens sans dégazage. Cependant, les macro et micro-fissures créées dans les spécimens comprimés à 68% contribuent à l'augmentation du volume de vide, qui peut bien expliquer l'augmentation d'absorption de NaOH à 3%.

Cependant, lorsque les spécimens sont dégazés sous un grand gradient de pression (610 mm Hg), la liqueur peut pénétrer dans les lumens qui sont plus profonds dû à l'efficacité de l'enlèvement d'air occlus dans des réseaux de passage améliorés, telle que discutée aux chapitres 5 et 6. La déstructuration des rayons ligneux et la création des petites micro-fissures, près de la lamelle mitoyenne composée entre des fibres voisines et les coins des fibres dans les directions axiale et radiale, améliorent le dégazage et favorisent la pénétration de la liqueur dans les trois directions. L'amplification des ouvertures des membranes de ponctuations par les pressions d'eau et d'air pendant un cycle de compression/décompression peut faciliter le dégazage et la pénétration de liquide entre des lumens voisins en direction tangentielle. En tout cas, la compression à 34% peut montrer un effet positif sur l'absorption de NaOH à 3% lorsque les spécimens ne sont pas séchés et sont dégazés à haute puissance avant l'imprégnation. Il y a donc une interaction entre la compression et le gradient de pression sur la pénétration de liqueur. Cette conclusion est en accord avec l'étude sur l'absorption d'eau présentée et discutée au chapitre 6.

Dans certains cas, l'absorption de NaOH à 3% dans les blocs non comprimés semble un peu plus élevée que celle des blocs comprimés à 34% de déformation lorsque l'imprégnation est faite sous une pression absolue de 760 mm Hg (sans dégazage). Cela pourrait être expliqué par des fissures visibles qui se produisent parfois pendant le séchage à l'air de spécimens non-traités et la petite réduction du volume de lumens du bois de printemps après une compression de 34%, ce qui était démontré au chapitre 5. Dans notre expérience, l'humidité de tous les spécimens a été ajustée à 39%, qui était près de l'humidité des blocs après une compression

radiale de 68%. Cette valeur est un peu plus élevée que celle du point de saturation d'eau des fibres (30%). Quand l'humidité originale (150%) des spécimens est ajustée à 39%, par séchage à température ambiante, quelques fissures longitudinales évidentes se produisent à la fin sur la coupe tangentielle. Ce phénomène est probablement dû à la différence de vitesse entre l'évaporation d'eau sur la surface externe et la diffusion d'eau à l'intérieur des blocs. Évidemment, l'évaporation d'eau externe est plus rapide que la diffusion intérieure, parce que la chaleur est fournie par l'environnement. Il en découle que, pendant l'ajustement d'humidité des blocs, la surface des blocs est plus sèche que l'intérieur, ce qui produit un rétrécissement externe. Ce phénomène génère une tension sur la surface de la pièce de bois qui produit des micro ou macro-fissures. Les fissures peuvent être de type micro ou macro selon les conditions de séchage et la nature du bois. Les macro-fissures augmentent le volume de vide, et influencent l'absorption de liquide. La grande différence d'humidité entre les spécimens et l'air ambiant favorise le développement de fissures [26]. Le séchage du bois vert est un excellent exemple de ce phénomène. On retrouve plusieurs écrits sur le rétrécissement, les fissures, l'effet sur les propriétés et l'imprégnation du bois et la perméabilité radiale mesurée par gaz ou par séchage dans l'air ambiant ou à haute température [158, 159]. Cependant, ce problème n'est pas présent pour des spécimens qui subissent une compression de 34%, quand leur humidité est ajustée de 75% jusqu'à 39%. Premièrement, l'étendue de l'ajustement d'humidité des spécimens comprimés (34%) de 75% à 39% est beaucoup moindre que celle des spécimens témoins qui doivent passer de 150% à 39%. Deuxièmement l'augmentation de la surface spécifique des spécimens comprimés à 34% augmente les passages de diffusion de l'eau et favorise son évaporation grâce à la création des micro-fissures créées entre des cellules voisines. Donc, l'ajustement d'humidité des spécimens comprimés à 34% était beaucoup plus facile, rapide et court par rapport à celui des spécimens témoins. Troisièmement, le faible taux de compression de 34% n'est pas suffisant pour créer des macro-fissures dans les spécimens.

7.1.2 Effet d'un dégazage fort

Les résultats présentés à la figure 7-2 montrent l'effet du dégazage sur l'absorption de la liqueur dans le procédé d'imprégnation.

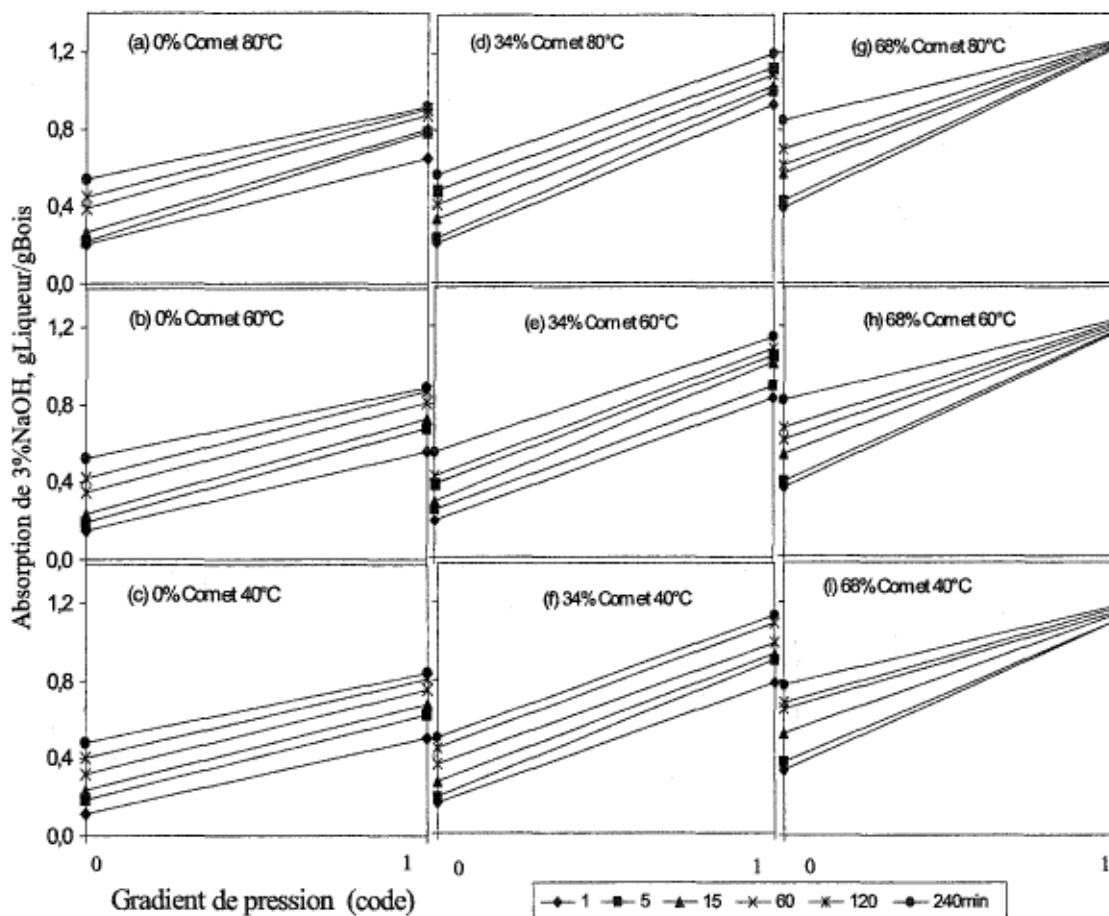


Figure 7-2 Effet du dégazage (sous un gradient de pression de 610 mm Hg avant l'imprégnation) sur le degré de pénétration de liqueur chimique.

Il est évident que les spécimens dégazés ont absorbé considérablement plus de NaOH à 3% que ceux sans-dégazage dans tous les procédés d'imprégnation. Le dégazage se fait pour enlever l'air dans l'espace vide des spécimens et créer un gradient de pression qui est la force de pénétration du liquide [74]. Malcov *et al.* [96] ont constaté un grand effet du pré-étuvage et d'une surpression sur l'absorption de la liqueur/liquide. Donc, le dégazage, le pré-étuvage et la surpression créent un gradient de pression. Le grand gradient de pression est important sur

l'absorption de liquide pour des temps courts, mais l'air résiduel a aussi une certaine importance car l'air empêche la liqueur de pénétrer. La liqueur ne peut pénétrer complètement que lorsque l'air résiduel a disparu ou est sorti.

L'augmentation du gradient de pression élargie probablement les ouvertures des membranes, car les membranes des ponctuations sont sous une tension causée par la pression [8]. Le dégazage à haute puissance peut probablement modifier les réseaux de passages, principalement les ouvertures dans la margelle des membranes de ponctuations, particulièrement pour les spécimens chauds qui sont plus flexibles. La modification des ouvertures des ponctuations aréolées est très significative pour l'efficacité de dégazage et la pénétration, car elles ont des pores très étroits et des points critiques.

L'effet du dégazage à 610 mm Hg est de beaucoup supérieur à celui à 0 mm Hg pour les spécimens comprimés à 68%. Nos résultats indiquent que les absorptions varient très peu avec l'augmentation du temps d'imprégnation. On constate que le dégazage sous vide (610 mm Hg) durant 1 minute est suffisant pour les spécimens comprimés à 68%, probablement après le dégazage. La plupart des capillaires (lumens, ponctuations, fissures) des régions périphériques sont remplies immédiatement par la liqueur. Donc, l'effet du dégazage sous vide de 610 mm Hg est très significatif sur les spécimens comprimés à 68% dû à l'amélioration des réseaux des passages. La création de macro-fissures et de micro-fissures aux coins des fibres et entre des fibres voisines dans la direction axiale, la déstructuration des rayons ligneux dans la direction radiale et les ponctuations sur les parois radiales (montrée au chapitre 5) peuvent bien expliquer l'efficacité du dégazage car les réseaux de passage de liquide sont grandement améliorés dans toutes les trois directions.

7.1.3 Effet de la température

L'optimisation des conditions d'imprégnation physique, comme la température, peut être utilisée pour améliorer la pénétration de liquide dans les blocs de bois. La température influence les propriétés physiques des liquides et des gaz ainsi que la structure et les propriétés

physiques du bois. La température diminue la viscosité du liquide et augmente la pression d'air et l'évaporation d'eau. La réduction de la viscosité améliore la pénétration initiale et l'effet de la température sur l'air et sur l'eau dans les spécimens affecte la pénétration résiduelle.

La figure 7-3 montre l'effet de la température sur l'absorption de liqueur chimique. L'absorption de liqueur augmente lentement avec l'augmentation de la température de 40 °C à 80 °C. Il est clair que l'effet de la température sur l'absorption de la liqueur est très limité en comparant avec les effets de la compression radiale et du gradient de pression. Cependant, l'effet de la température existe vraiment et n'est pas négligeable. La température a une influence sur l'absorption de liqueur chimique dans notre processus d'imprégnation. La température diminue la viscosité du liquide et ainsi augmente la pénétration de la liqueur, car elle est en proportion inverse de la viscosité du liquide ou de la liqueur [142].

Dans ce plan expérimental d'imprégnation chimique, les blocs sont réchauffés dans l'eau chaude durant 20 minutes avant l'imprégnation et la température (40-80°C) est semblable à celle du procédé d'imprégnation. Notre but est de maintenir les spécimens et la liqueur chimique au début d'imprégnation à la même température pour évaluer son effet sur la diffusion des produits chimiques. Ce préchauffage a cependant d'autres effets sur la pénétrabilité des blocs. Généralement, la présence d'air dans les pores des blocs de bois est l'obstacle principal à la pénétration de liqueur dans les blocs [90, 100, 103, 160, 161, 162]. L'effet principal du préchauffage est l'enlèvement partiel de l'air des blocs, dû à l'expansion thermique. De plus, l'augmentation de la pression partielle de la vapeur d'eau dans les blocs causée par une température élevée expulse l'air des pores des blocs. Le préchauffage des blocs peut aussi possiblement réduire un peu la limitation du transport de masse entre les trachéides voisines qui est causée par la résine et l'aspiration de ponctuation [26]. La concentration de pectine dans la lamelle mitoyenne est la plus haute et une distribution homogène de pectine est notée à travers les parois secondaires [15]. La matière pectique peut se dissoudre dans l'eau chaude et la liqueur alcaline [9, 10, 15]. Il est suggéré que la cuisson à la vapeur résulte en l'hydrolyse de certains constituants de la membrane de ponctuations [68].

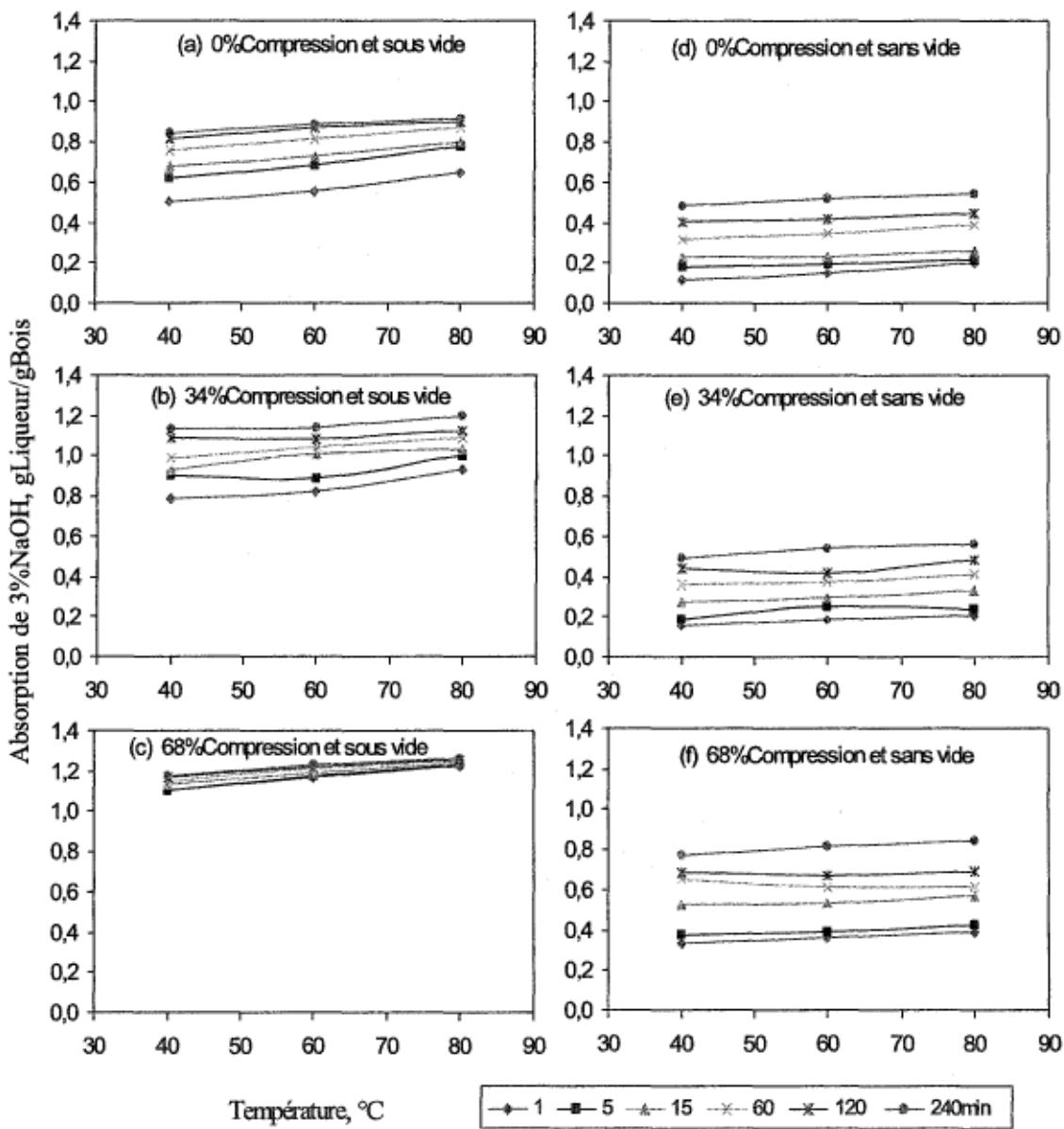


Figure 7-3 Effet de la température sur l'absorption de la liqueur chimique

L'extraction et l'étuvage améliorent la perméabilité des bois résineux, probablement par une action hydrolytique sur les membranes de ponctuations. Ces changements chimiques peuvent réduire l'efficacité de l'aspiration de ponctuations puisqu'ils améliorent la pénétration. Une température d'étuvage supérieure à 100°C est plus efficace pour la pénétration [8]. Malkov *et*

al. [96] ont utilisé l'étuvage des spécimens avant l'imprégnation à 110°C et durant 10 min. Ils ont trouvé que cette technique est très efficace pour augmenter la pénétration initiale pendant l'imprégnation sous haute pression (9 Bars) et à 80°C (liqueur de cuissons). Cependant, dans nos essais, le réchauffage des spécimens dans l'eau chaude de 40-80°C n'est pas efficace comme procédé d'étuvage à la vapeur. Cependant, au début de l'imprégnation, l'air capturé dans les capillaires des blocs de bois résiste à l'entrée de la liqueur dans les blocs. La constante de diffusion des gaz (D) change proportionnellement avec la température (T) et la pression (p) selon l'équation suivante [8]:

$$D = D_0 \times (T/273)^{1,75} \times 760/p$$

Où D_0 est la constante de diffusion du gaz à 0°C et à 760 mm Hg. Quand la pression de l'air comprimé dans les capillaires est plus élevée que la somme de la pression atmosphérique et de la pression hydraulique statique, l'air se dissout ou se diffuse en petites bulles dans la liqueur. Ensuite, un nouveau cycle d'équilibre de pression d'air recommence. Selon l'équation ci-dessus, la constante de diffusion des gaz augmente en fonction de la température à une puissance de 1,75. Donc une température plus élevée favorise l'atteinte de l'équilibre et réduit le temps. Un nouveau cycle d'équilibre est aussi de plus en plus long en comparant au cycle qui le précède. La répétition se fait avec le temps d'imprégnation jusqu'à ce que tout l'air sorte des capillaires et se diffuse dans la liqueur chimique.

En fait, la température peut réduire la viscosité de la liqueur alcaline, la tension de surface de la liqueur, la tension de surface des capillaires du bois ainsi que la force de liaison comme les liaisons hydrogènes entre la surface des capillaires et la liqueur chimique. Le préchauffage de la liqueur de NaOH à 3% peut enlever une partie de l'air dans cette liqueur, car l'air est plus soluble à basse température. Donc tout cela favorise une plus grande pénétration du liquide dans les spécimens imprégnés.

La température d'imprégnation peut réduire le temps d'un cycle d'équilibre dynamique de pression pendant la période de pénétration résiduelle. Enfin, la température augmente la vitesse d'absorption de la liqueur. En théorie, tous ces facteurs peuvent améliorer la vitesse de pénétration de la liqueur. Le rayon des pores est la variable qui influence le plus, car la vitesse

de pénétration augmente à la puissance 4 du rayon selon l'équation de Hagen-Poiseuille [142]. De plus, les conditions idéales se retrouvent lorsque la viscosité de la liqueur et l'angle de contact diminuent, et que la tension de surface de la liqueur augmente. La vitesse diminue avec le temps d'imprégnation. Pour la matière première, la pénétration de la liqueur est optimale dans le bois sec.

7.1.4 Effet du temps

La figure 7-4 montre l'effet du temps d'imprégnation sur l'absorption de la liqueur chimique. On a trouvé que la forme de la courbe d'absorption de NaOH à 3% (figure 7-4) est différente de celle d'absorption d'eau (figure 6-7). Pour les spécimens comprimés à 34% ou 0% et dégazés, les courbes d'absorption de NaOH à 3% ont augmenté avec le temps, mais l'absorption d'eau atteint un plateau très vite. La différence peut être causée par la température, la viscosité et la présence de liqueur à 3% de NaOH. La température élevée peut favoriser l'expulsion de l'air occlus aussi bien que la pénétration résiduelle mentionnée à la section 7.1.3. Le réchauffage des spécimens avant l'imprégnation a aussi déjà enlevé une partie de l'air occlus, ce qui facilite la pénétration. Selon le principe d'hydratation des ions sodium, la liqueur de NaOH à 3% a un effet de gonflement un peu plus efficace que l'eau telle que mentionnée à la figure 3-4. Cependant les ions sodium hydratés dans le cas de NaOH à 3% pénètrent comme l'eau seulement dans les régions amorphes, sans pénétrer dans les régions cristallines [133, 143, 144]. Mais le degré de gonflement du bois dépend non seulement de la nature de liqueur mais aussi de la structure du bois. La déstructuration du bois favorise grandement le gonflement [133]. Donc, la liqueur de NaOH à 3% a une influence plus importante sur les spécimens comprimés à 68% que sur ceux qui étaient comprimés à 34% ou moins (témoins).

Il est facile de constater que la tendance de l'absorption de la liqueur est complètement différente entre les procédés avec dégazage (figure 7-4a, b et c) et sans dégazage (figure 7-4d, e et f). La tendance d'absorption de NaOH à 3% avec le dégazage est très semblable pour les spécimens traités au même taux de compression (figure 7-4a, b et c).

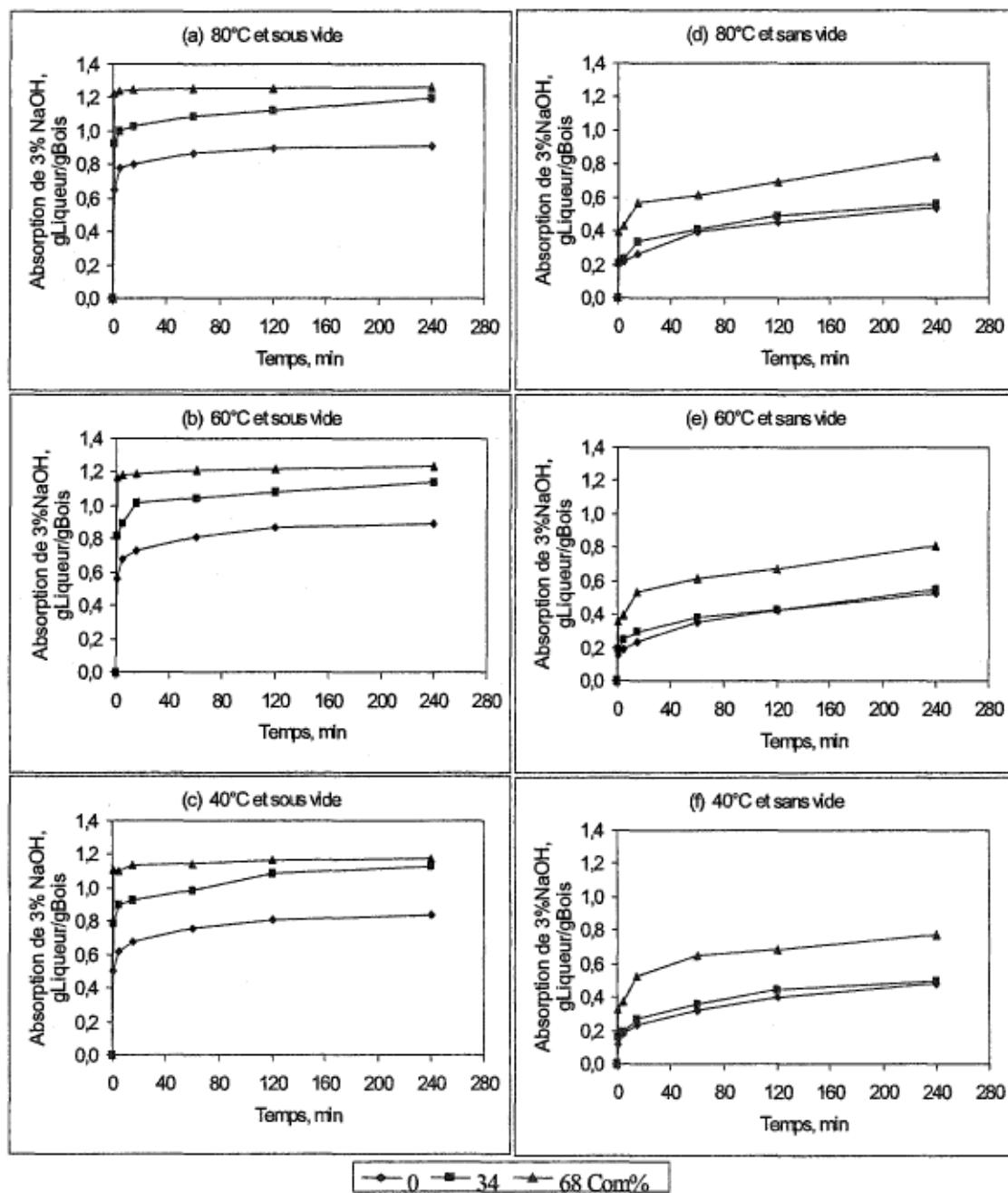


Figure 7-4 Effet du temps d'imprégnation sur l'absorption de NaOH à 3%

Selon la pente des courbes, la pénétration se passe en trois étapes durant le procédé d'imprégnation de liqueur. Au début, soit durant la première minute, la pénétration initiale de

la liqueur augmente drastiquement, ensuite, elle augmente de plus en plus lentement, puis atteint presque un plateau.

Mais, une différence existe également pour les spécimens avec des degrés différents de compression radiale. Premièrement, leur niveau de plateau de pénétration de la liqueur est différent. Il est d'environ 0,85-0,90, 1,15-1,20, 1,2-1,25 gLiqueur/gBois sec pour les compressions radiales de 0, 34, et 68%, respectivement. Le niveau de plateau de la pénétration est plus élevé pour la compression radiale plus élevée. Deuxièmement, la différence de temps requis pour atteindre le plateau de pénétration de liqueur chimique est d'environ 1, 20, et 20 minutes pour la compression de 68, 34 et 0%, respectivement. Les courbes d'absorptions de NaOH à 3% ont atteint leur niveau de plateau après un temps d'imprégnation relativement court pour chacun des trois genres de spécimens surtout pour la compression de 68% avec dégazage. Toutes ces différences viennent premièrement du degré de création de micro et macro-fissures dans la direction radiale et tangentielle et de la déstructuration des rayons ligneux dans la direction radiale et des membranes de ponctuations sur les parois radiales ; deuxièmement la force de pénétration - le gradient de pression et troisièmement, l'amélioration des réseaux des passages. À cause de la limitation du gradient de pression de 610 mm Hg, l'absorption pour les spécimens comprimés à 68% ($T_e \approx 0.39 + 1.31 \approx 1.7 \text{ gLiquide/gBois}$) ne peut pas arriver à la saturation complète ($T_e \approx 1.9 \text{ gEau/gBois}$) pour un court temps. La pénétration résiduelle contribue moins à l'absorption de la liqueur et dure très longtemps avant d'être complète. Dans les cas des témoins et des spécimens comprimés à 34%, les réseaux de passages sont plus longs et, pour arriver à un même degré de dégazage, un temps plus long est requis. Quand le dégazage n'est pas suffisant, moins de capillaires et moins de régions sont remplies immédiatement par la liqueur (souvent dans les régions internes).

Cependant, pour le procédé d'imprégnation sans dégazage (figure 7-4d, e et f), l'absorption de NaOH à 3% a augmenté graduellement en tout temps après la pénétration initiale. La pénétration de NaOH à 3% se passe clairement aussi en trois étapes qui sont les phases de pénétrations initiale, résiduelle et complète. Le procédé sans dégazage présente beaucoup

moins d'absorption de NaOH à 3% initiale (durant la première minute), mais beaucoup plus pendant la période résiduelle et complète, en comparant aux procédés d'imprégnation avec dégazage (figure 7-4 a, b et c). L'absorption de NaOH à 3% dans les procédés sans dégazage augmente clairement continuellement pendant quatre heures d'imprégnation. Par exemple, l'absorption de liquide après une minute est d'environ 0,15, 0,20, et 0,35 gLiquide/gBois pour les spécimens comprimés à 0, 34 et 68%. Ils sont beaucoup inférieurs à ceux des procédés avec dégazage. Les taux d'absorption de liquide de NaOH à 3% augmentent jusqu'à 0,52, 0,55, et 0,80 gLiquide/gBois pour les spécimens sous une compression de 0, 34, et 68%, respectivement, après quatre heures d'imprégnation.

Le dégazage crée un gradient de pression qui peut provoquer un élargissement des pores sur les margelles des membranes de ponctuations, puis il augmente principalement la vitesse de pénétration initiale de la liquide et ne change pas le volume de vide. Les lumens, les macrofissures et les micro-fissures des spécimens non dégazés sont remplis d'air. L'air capturé dans les spécimens non dégazés peut graduellement et de plus en plus lentement se dissoudre et diffuser dans la liquide chimique. Entre-temps, la pénétration de la liquide continue lentement jusqu'à ce que tout l'air soit sorti et que tout le volume de pores soit rempli par la liquide chimique. La température élevée favorise l'évaporation de l'eau et augmente la pression dans les pores.

La vitesse d'absorption de la liquide chimique dans les spécimens non dégazés est beaucoup plus lente que celle des blocs dégazés sous la pression absolue de 150 mm Hg. À cause de cela, l'imprégnation par l'eau, des copeaux secs, a souvent besoin de plus de 24 heures. Autrement dit, avant l'imprégnation des copeaux dans le liquide, il est important d'enlever l'air capturé le plus complètement possible. Dans nos procédés, le préchauffage et l'évacuation sont utilisés pour atteindre ce but.

7.1.5 Optimisation du procédé de pénétration de la liquide

Selon l'effet des diverses variables, la condition optimale pour l'absorption de liquide chimique dans les blocs a été obtenue avec un vide de 610 mm Hg, une compression radiale de

68%, une température de 80 °C et un temps de 1 à 5 minutes. Notre objectif est cependant l'optimisation du procédé d'imprégnation des blocs pour l'absorption chimique et l'atteinte d'une distribution chimique relativement uniforme. La prochaine partie est consacrée à l'absorption de produits chimiques (NaOH).

7.2 Effets des diverses variables sur l'absorption de NaOH

Selon les mécanismes d'imprégnation chimique, la pénétration de liquide et la diffusion de produits chimiques contribuent ensemble à l'absorption de produits chimiques (mg NaOH/g Bois) des copeaux de bois.

7.2.1 Effets de la compression radiale et du gradient de pression

Au chapitre 5, nous avons constaté que la compression radiale change principalement la microstructure des blocs de bois. En fait, elle crée de nouvelles fissures (micro et/ou macro), augmente le nombre de passages et le volume de vide, modifie les réseaux de passage du liquide réduisant ainsi la distance entre les passages voisins et augmente la surface spécifique [66].

La figure 7-5 montre l'effet de la compression radiale sur l'absorption de l'hydroxyde de sodium. En général, l'absorption de NaOH augmente avec l'augmentation du taux de compression. Parkinson *et al.* [44] ont constaté que la compression à un rapport de 5:1 augmente significativement l'absorption de sulfite de sodium en comparant avec un rapport de 3:1. Donc, nous obtenons la même conclusion: le taux de compression élevé augmente l'absorption de produits chimiques. Les résultats de l'absorption d'eau présentée au chapitre 6 et la partie précédente de ce chapitre, peuvent bien expliquer ce phénomène, parce que la compression radiale améliore principalement les réseaux de passages et augmente possiblement le volume de vide, enfin elle améliore la pénétrabilité des blocs. Alors, la compression influence l'absorption de NaOH due à l'augmentation de la pénétrabilité des blocs comprimés.

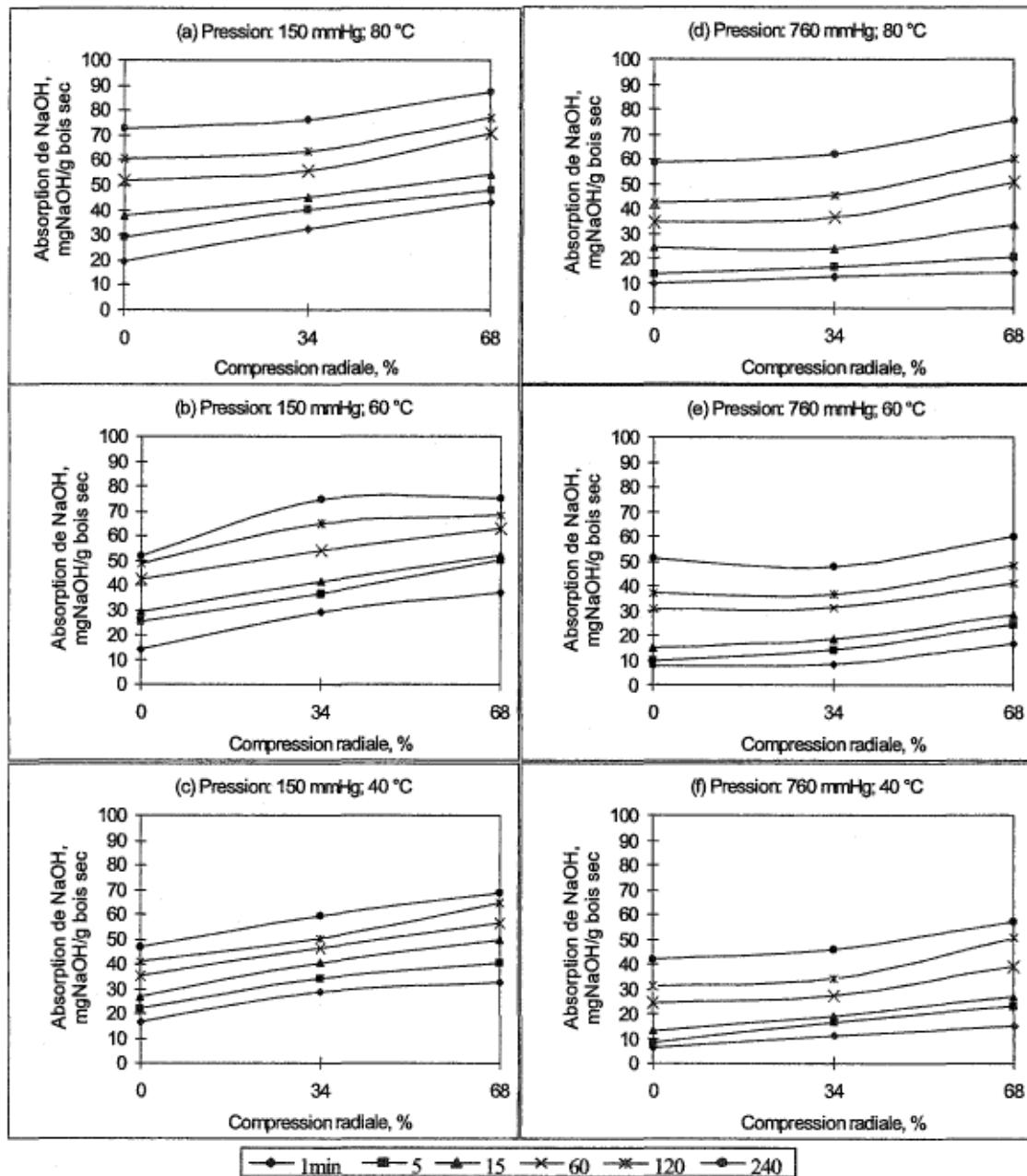


Figure 7-5 Effet de la compression radiale sur l'absorption d'hydroxyde sodium

Comparant la présence ou non de vide (figure 7-5), la forme des courbes est très différente. L'effet d'une faible compression dans le cas d'absence de dégazage est beaucoup plus faible qu'après dégazage. Sans dégazage, l'effet d'une faible compression (34%) sur les blocs peut être examiné sur l'absorption de NaOH. Ce phénomène ressemble à celui obtenu pour l'absorption de la liqueur de NaOH à 3% (section 7.1.1), mais est différent pour l'absorption

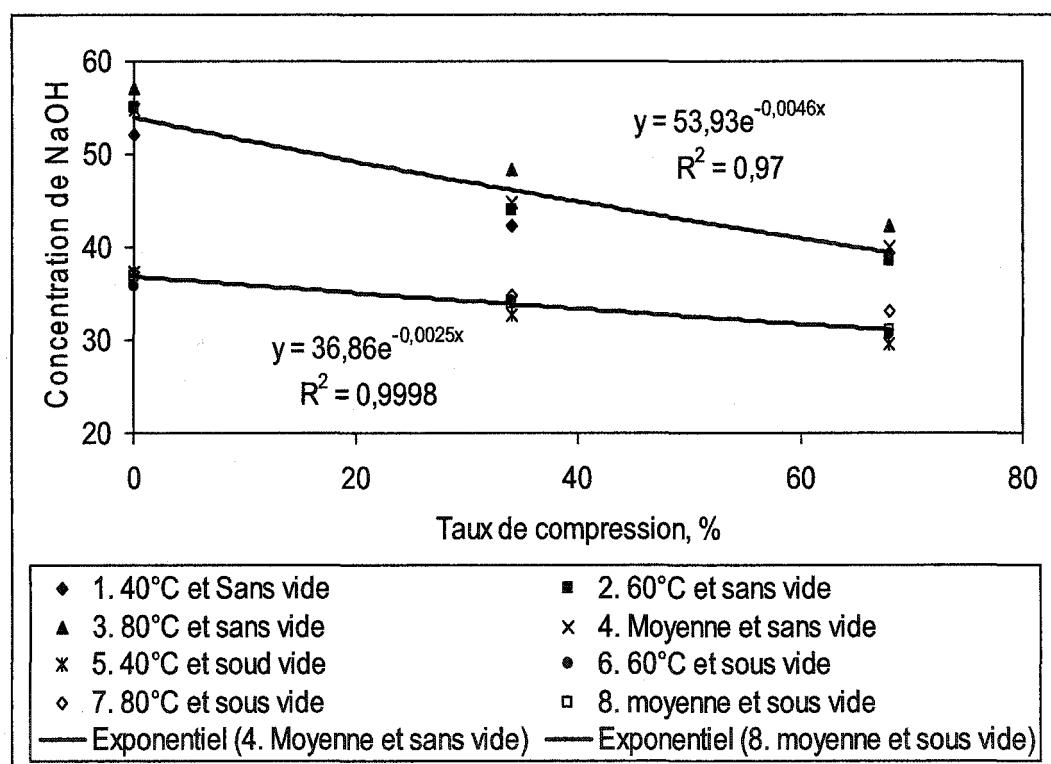
d'eau (chapitres 5 et 6). Ce sont les mêmes explications pour l'absorption de NaOH à 3%. Les facteurs sont la déstructuration des rayons augmentant la pénétration dans la direction radiale, la création des micro-fissures situées près de la LMC et au coin des fibres qui facilite la pénétration dans les directions longitudinale et radiale, la récupération de lumen de fibres, le relâchement de la ponctuation aspirée causée par un temps prolongé pour atteindre l'équilibre d'humidité et au réchauffage avant l'imprégnation dans la liqueur chaude de NaOH à 3%.

Tout cela améliore la pénétration en passant de lumen à lumen dans la direction axiale et bien sûr très peu dans la direction tangentielle. La liqueur peut pénétrer dans les capillaires plus profondément dans les régions internes dans le cas où un dégazage est effectué. La bonne pénétration d'eau et de liqueur discutée dans le chapitre 6 et ci-dessus, est causée non seulement par le taux de compression et le dégazage, mais aussi par l'interaction entre la compression radiale et le gradient de pression.

Lorsque les spécimens sont dégazés sous vide de 610 mm Hg et que l'imprégnation est effectuée pendant un court temps, la pente des courbes pour la basse compression radiale est plus abrupte que celle pour une haute compression radiale (figure 7-5 a, b et c). Ce phénomène est très évident quand l'imprégnation est faite dans une minute et à 40 °C (basse température). Ceci est le contraire pour l'absorption de la liqueur (figure 7-1a, b et c). Donc, on déduit que la compression augmente l'absorption de NaOH non seulement par la pénétration - l'absorption de NaOH à 3% mais aussi par la diffusion.

La figure 7-6 montre la concentration de liqueur absorbée en fonction du taux de compression. Malgré le fait que les concentrations moyennes de liqueur absorbée (NaOH) après dégazage sont beaucoup moindres que celles obtenues sans dégazage, on trouve que toutes les concentrations sont plus élevées que la concentration originale (29,12 mg NaOH/g Liquide). Autrement dit, pendant la pénétration initiale de liquide, les molécules de NaOH ou plus précisément les ions de sodium hydratés dans la liqueur (NaOH à 3%) peuvent pénétrer dans les passages principaux sans barrière. Et il est clair que la pénétration initiale est dominante sur l'absorption chimique pour les spécimens dégazés. En outre, la pénétration de la liqueur

n'est pas le seul facteur sur l'absorption de produits chimiques. C'est la diffusion qui cause la différence évidente de concentration de NaOH dans la liqueur absorbée. Après dégazage, la diffusion de NaOH est limitée par la grande vitesse de pénétration initiale de la liqueur dans la direction des capillaires (longitudinale), car la liqueur chimique n'a pas suffisamment de temps pour entrer en contact avec les parois des cellules. Mais lorsqu'il n'y a pas de dégazage, la vitesse de pénétration initiale de la liqueur est faible et la solution (NaOH) peut diffuser vers les parois cellulaires des trachéides.



L'augmentation du volume de vide et de la surface spécifique après une compression peut améliorer l'absorption totale de NaOH par la pénétration de NaOH à 3% et la diffusion de NaOH vers les parois des trachéides, respectivement, quand la surface des capillaires entre en contact avec la liqueur chimique. De plus, les réseaux de passages de la liqueur chimique dans les blocs comprimés sont plus proches entre eux que dans les blocs non traités. Donc, la compression radiale peut diminuer la distance et le temps de diffusion des produits chimiques.

Il est facile de présumer que la compression radiale améliore la distribution des produits chimiques dans les blocs entiers. Pour vérifier cette déduction, nous examinerons la distribution de l'hydroxyde de sodium d'un point de vue macroscopique (chapitre 8).

On remarque dans la figure 7-6 que, pour des conditions identiques, la concentration de liqueur absorbée dans les spécimens fortement comprimés est généralement plus faible que pour les spécimens peu comprimés. Le rapport de la surface de contact sur le volume rempli par la liqueur absorbée peut nous expliquer la différence de concentration de NaOH dans la liqueur absorbée. Le rapport de la surface des pores (S) sur le volume des pores (V) a été discuté à la section 5.4.3. Les petites micro-fissures ont un rapport de surface à volume ($S/V=4/d$, où d est le diamètre) plus grand que les grosses macro-fissures. Ainsi, les produits chimiques diffusent vers les parois des cellules plus facilement dans le cas de petites fissures, dû à un rapport de la surface de contact sur le volume rempli plus élevé.

En pratique, la compression radiale produit un gradient de pression, quand les blocs du bois sont relâchés de nouveau. L'évaluation de l'effet du gradient de pression sur l'absorption chimique est essentielle pour la simulation du procédé d'imprégnation chimique dans la fabrication des pâtes mécaniques. L'effet du gradient de pression sur la pénétration d'eau est présenté dans le chapitre 6. Mais maintenant, on discutera l'effet sur l'absorption de produit chimique.

La figure 7-7 montre l'effet du gradient de pression sur l'absorption de NaOH. Les pentes d'absorption de NaOH augmentent avec l'augmentation du gradient de pression. Dans tous les cas, l'absorption de NaOH avec le dégazage sous vide de 610 mm Hg est plus élevée que celle sans le dégazage. Avec le dégazage, l'air dans les lumens, les ponctuations aréolées et les fissures est largement enlevé, surtout dans les régions externes. Bien sûr, le degré d'enlèvement d'air dans des blocs dépend de la structure de réseaux de passages qui est améliorée par la compression radiale, telle que : la déstructuration des rayons et des membranes de ponctuations et la création de fissures près de la LMC et aux coins des fibres.

Tout ceci favorise l'augmentation de gradient de pression qui en revanche favorise la pénétration de la liqueur jusqu'aux régions internes des copeaux.

L'effet du gradient de pression sur l'absorption de NaOH est principalement associé au mécanisme de pénétration du NaOH. Dans le même graphique, la pente du bas est plus abrupte que celle du haut. Il est clair que l'effet du gradient de pression est surtout important pour la pénétration initiale. De plus, le dégazage aide la liqueur chimique à entrer par les passages, dans les régions internes profondes où la liqueur chimique n'entre pas facilement sans l'aide du dégazage. Ensuite, le produit chimique, qui est déjà dans les réseaux de passages, diffuse vers les parois des fibres dans les 3 directions.

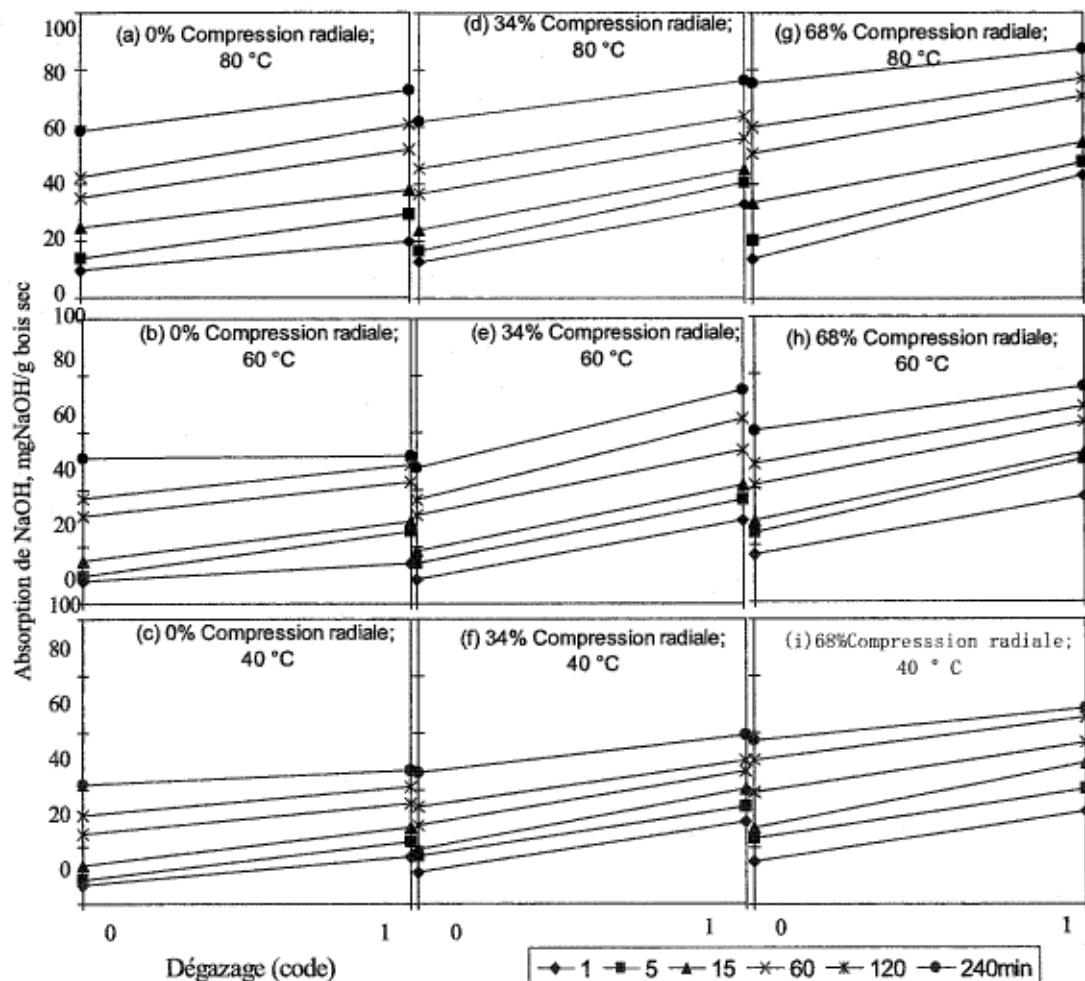


Figure 7-7 Effet du dégazage des spécimens avant l'imprégnation sur l'absorption du NaOH

Lorsque le dégazage crée un gradient de pression élevé, la liqueur chimique peut pénétrer plus profondément par les divers passages. En plus, la distance entre les réseaux de passages voisins diminue avec l'augmentation de la compression radiale. La diffusion des produits chimiques se fait dans tous les passages qui sont remplis de liquide. Pour le cas de l'imprégnation durant une minute à une même température, les pentes d'absorption de produits chimiques augmentent avec le degré de compression radiale. Autrement dit, l'effet du gradient de pression est plus marqué dans le cas d'une compression radiale élevée.

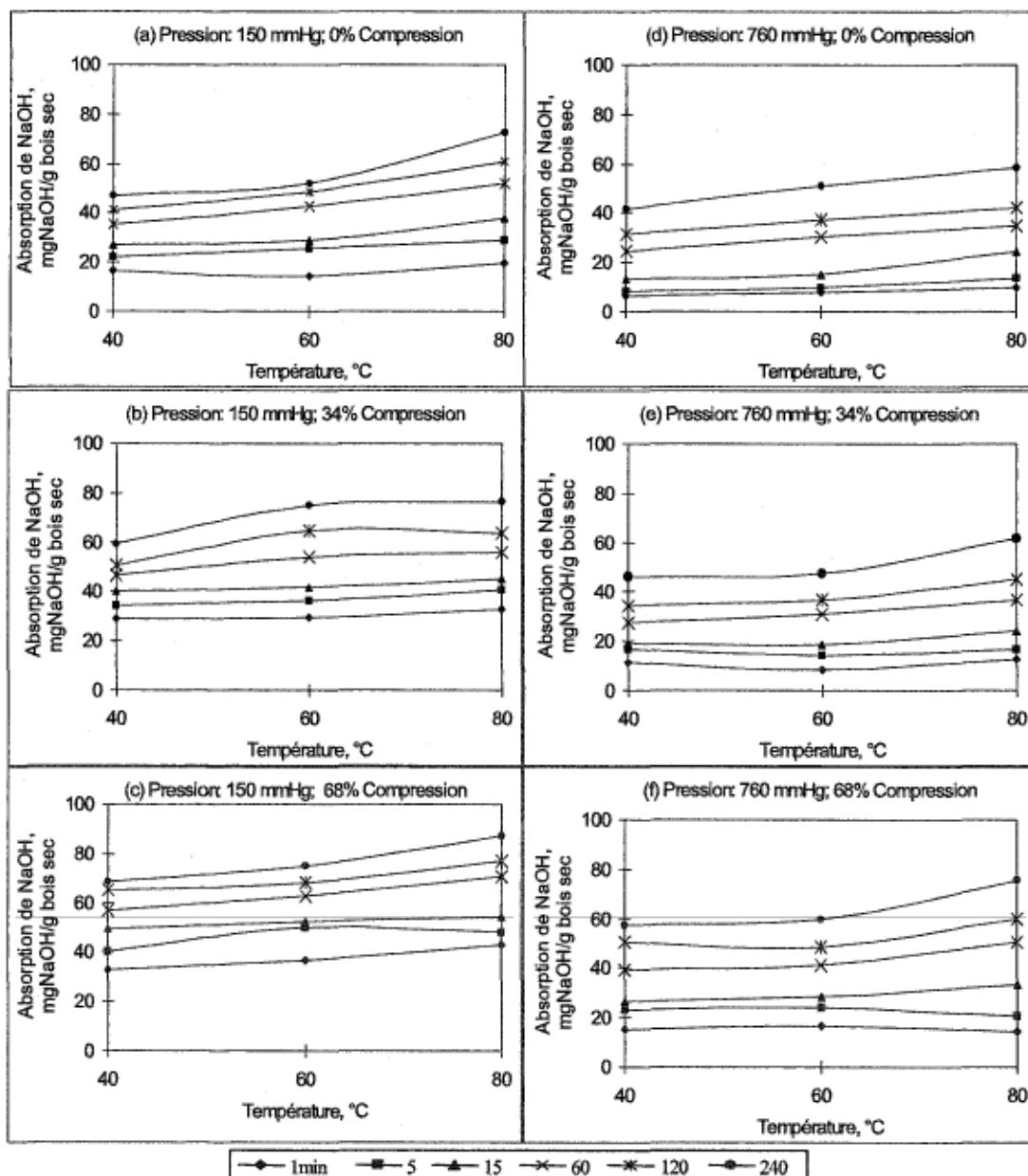


Figure 7-8 Effet de la température sur l'absorption du NaOH

7.2.2 Effet de la température

Notre but initial est d'optimiser le procédé d'imprégnation chimique des blocs dans une liqueur de peroxyde d'hydrogène alcalin. À cause de la décomposition du peroxyde à haute température, la plage de température dans notre expérience varie de 40 à 80°C afin de garder l'efficacité du peroxyde d'hydrogène. La figure 7-8 montre l'effet de la température sur l'absorption de NaOH.

7.2.3 Effet du temps

La figure 7-9 montre l'effet du temps d'imprégnation sur l'absorption de NaOH. L'absorption de NaOH augmente avec le temps d'imprégnation dans tous les cas. Au temps court de 5 minutes, l'absorption de NaOH avec dégazage sous vide de 610 mm Hg augmente beaucoup plus que celle sans dégazage. Mais après environ 20 minutes, la vitesse d'absorption du produit chimique sans dégazage est plus haute que celle avec le dégazage. Ce phénomène peut être expliqué par les deux mécanismes pendant l'imprégnation des spécimens dans NaOH à 3%. Sous vide, la pénétration initiale est très importante, ensuite la pénétration résiduelle est très faible. Autrement dit, dans le cas d'une imprégnation sous vide, l'absorption du NaOH par pénétration vient principalement de la pénétration initiale. Mais dans le cas de l'imprégnation sans dégazage, l'absorption du NaOH par pénétration vient de la pénétration initiale et résiduelle, conjointement.

On note à la figure 7-9 que la pente des courbes à haute température est plus abrupte que celle à basse température. Ceci nous indique l'effet de la température sur l'absorption de NaOH principalement par le mécanisme de diffusion. On trouve que l'effet de la compression est particulièrement important lorsque le taux de compression est élevé. L'effet de la compression vient principalement de l'imprégnation initiale par le mécanisme de pénétration. Selon notre expérience, l'absorption de NaOH augmente pendant tout le temps d'imprégnation (4 heures). Donc, la valeur d'absorption maximale n'a pas été atteinte. Cela doit durer beaucoup plus de 4 heures pour obtenir une uniformité complète de distribution chimique.

Selon l'équation d'Arrhenius indiquée à la section 3.4.2, on peut modifier le coefficient de diffusion en changeant la température et l'énergie d'activation des produits chimiques. Bien que l'essence de bois, la concentration de liquide et les composants de la liquide influencent la diffusion, c'est la structure du bois qui limite la vitesse de diffusion. Une compression radiale peut diminuer la distance de diffusion et augmenter la surface de diffusion par la création des macro et micro-fissures.

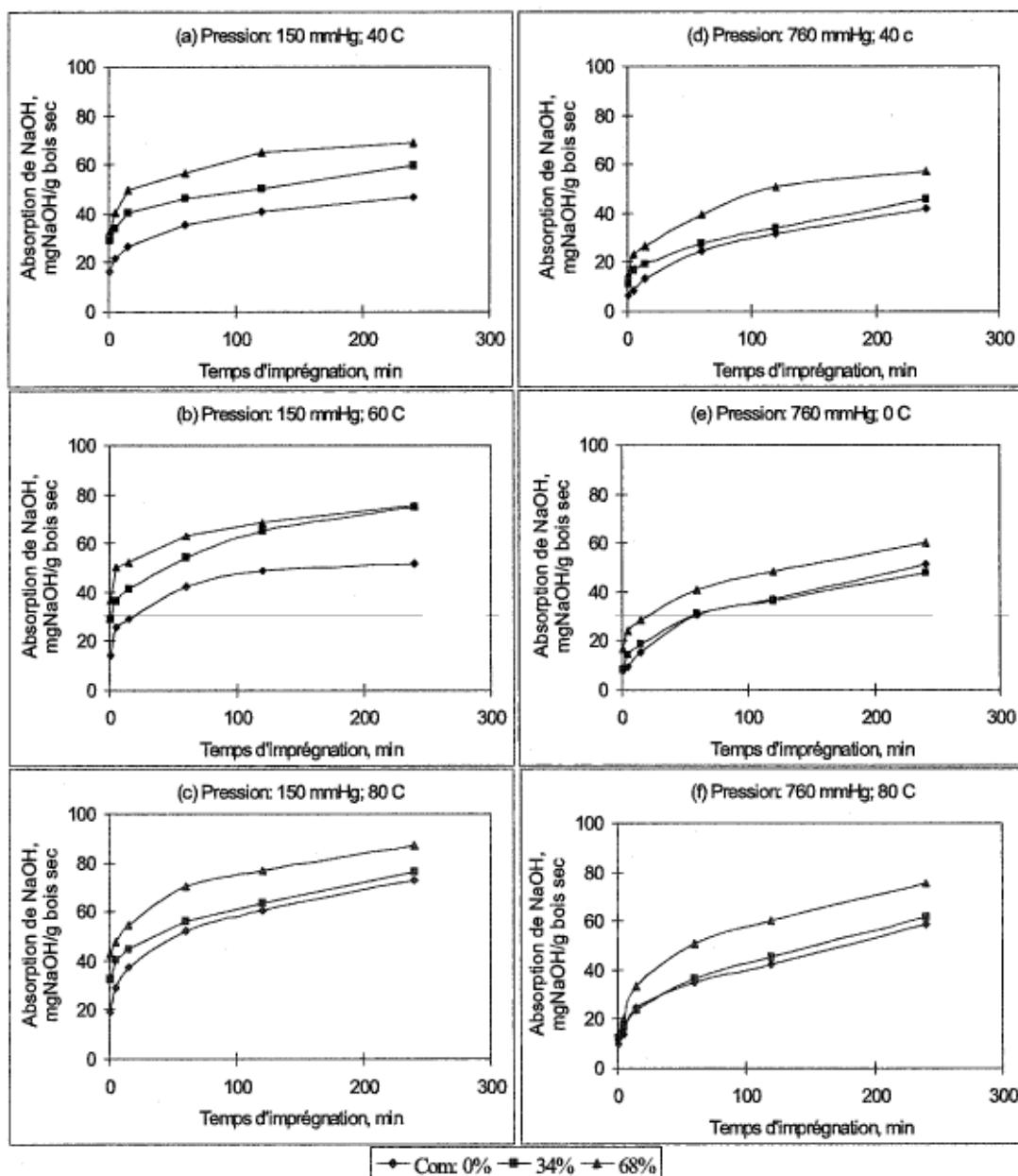


Figure 7-9 Effet du temps d'imprégnation sur l'absorption de NaOH

Donc, selon la première loi de diffusion de Fick [91], la compression peut faciliter le transfert de masse, car le taux de changement de transfert de masse est proportionnel à la surface de diffusion et inversement proportionnel à la distance. La diffusion par le bois est augmentée par les opérations de pré-traitement [8], indiquant que ceux-ci changent les structures des membranes de ponctuations, où environ 90% de la résistance à la diffusion transversale est localisée. Donc, l'utilisation d'une compression pour modifier la microstructure du bois et l'augmentation de la température est extrêmement importante pour une courte période d'imprégnation chimique à concentration limitée.

7.3 Effet de la grosseur des blocs et d'un traitement mécanique

7.3.1 Discussion sur les effets

La figure 7-10 montre les profils de prédition pour la compression radiale (CR) et le pressage par presse à vis (PV). Dans nos essais, l'imprégnation des copeaux et des blocs avec NaOH à 3% est réalisée à pression atmosphérique. Il faut noter que la condition de pénétration n'a pas été optimisée. Donc, la pénétration et la diffusion contribuent ensemble à l'absorption de NaOH.

L'effet des variables dans le cas de la compression radiale et de la compression par presse à vis est résumé aux figures 7-10a et 7-10b, respectivement. De la figure 7-10a à gauche, on trouve que, dans le cas de la compression radiale statique, l'absorption de NaOH diminue avec l'augmentation de l'épaisseur du spécimen (X_e) dans la direction radiale. Parkinson *et al.* [44] ont étudié l'effet de la presse à vis sur l'absorption de sulfite de sodium en comparant trois différentes fractions, et obtenu que la fraction de 2-4 mm (épaisseur) démontre une absorption de produits chimiques plus élevée que celle de la fraction 4-6 mm, qui est plus élevée que celle de la fraction de plus 6 mm.

Donc nos résultats sont en accord avec ceux de Parkinson *et al.*: l'effet de l'épaisseur du bloc est négatif sur l'absorption de produits chimiques. Il est bien connu que l'épaisseur des

copeaux est un facteur très important dans la mise en pâte chimique, car l'épaisseur des copeaux influence largement l'uniformité de distribution des produits chimiques [122]. Donc, après un même taux de compression radiale, les blocs plus minces absorbent plus de produits chimiques. En comparant la dimension des différents blocs, c'est la surface spécifique qui a la plus grande influence sur la diffusion de produits chimiques et le volume de vide sur la pénétration de liqueur.

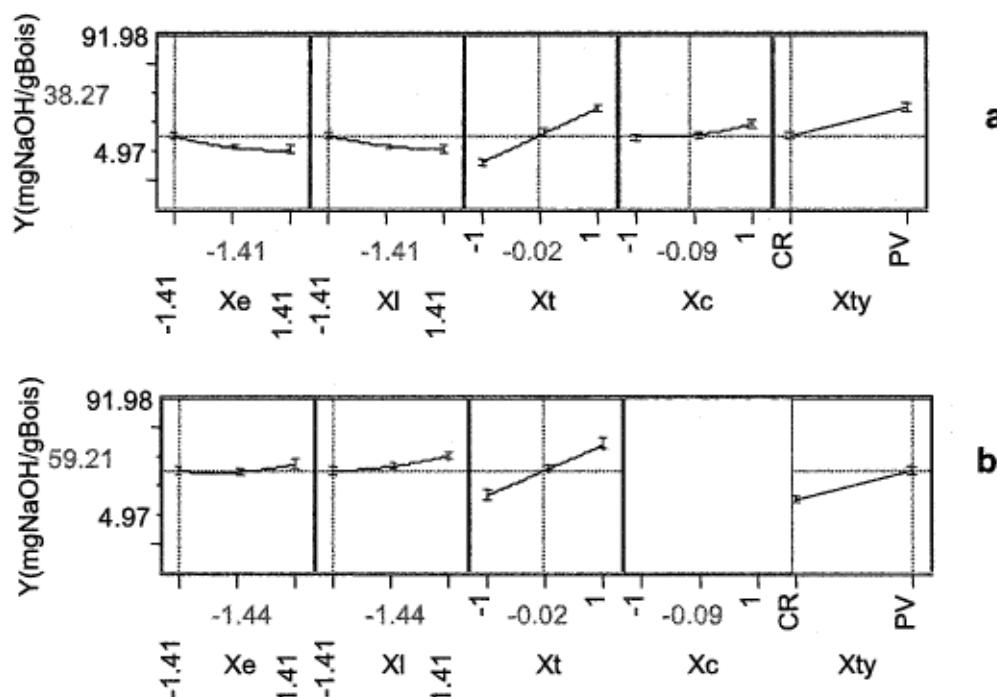


Figure 7-10 Profils de prédition: (a) compression radiale et (b) presse à vis Variables codées : Xe – épaisseur, XI – longueur, Xt – temps d'imprégnation, Xc – taux de compression, C – compression radiale, PV – presse à vis.

De la figure 7-10a, deuxième graphique à partir de la gauche, la longueur des spécimens (XI) a aussi un effet négatif mais son effet est moindre par rapport à l'épaisseur du spécimen. La pénétration de la liqueur se fait principalement dans la direction longitudinale. Un spécimen plus long est plus difficile à pénétrer jusqu'à la région centrale. Malcov *et al.* [73] ont étudié l'effet de la longueur d'un spécimen sur l'absorption de liquide/liqueur. Ils ont constaté que c'est la longueur et non pas l'épaisseur qui a un grand impact sur l'absorption de liquide. La

diffusion dans les directions transversales est souvent beaucoup plus lente que la pénétration dans la direction axiale (longueur). Donc, nos résultats sont en accord avec cette conclusion : l'épaisseur du bloc est plus importante que la longueur en ce qui concerne l'uniformité de distribution des produits chimiques [8]. De l'effet de la dimension des blocs après compression radiale, on trouve que la surface spécifique des blocs est un facteur très important sur l'absorption de NaOH. Donc, la diffusion de produits chimiques est dominante dans le procédé d'imprégnation par rapport à la pénétration.

Dans cette partie, le temps (X_t) est une variable très importante en absence de dégazage, car l'absorption de NaOH augmente continuellement. L'augmentation d'absorption de NaOH sera arrêtée lorsque la pénétration résiduelle et la diffusion chimique seront complètes, donc lorsque l'uniformité de distribution chimique sera atteinte. Une faible compression radiale (X_c) n'a presque pas d'effet sur l'augmentation de l'absorption du NaOH. En augmentant la compression, elle augmente très lentement d'abord, puis de plus en plus vite, en accord avec les résultats de l'absorption de NaOH en imprégnation sans dégazage, discutés à la section 7.1.2. Parkinson *et al.* [44] ont constaté que l'absorption de sulfite de sodium est largement améliorée par l'utilisation d'une compression au taux de 5:1 (v/v) en comparant avec le taux de 3:1. L'augmentation du volume de vide et surtout celle de la surface spécifique sont de bons moyens pour améliorer l'absorption de produits chimiques.

Pour réaliser une comparaison entre la compression radiale (CR) et la compression par presse à vis (PV), on suppose que le taux de compression pour la presse à vis est de 2:1 (V/V), ce qui représente environ 50% de déformation. La figure 7-10a (à droite) montre la différence des effets entre les deux différents traitements mécaniques. Dans nos essais, la presse à vis a un plus grand effet positif sur l'absorption de NaOH. Pour la compression, l'épaisseur et la longueur ont un effet négatif sur l'absorption de NaOH; le temps est une variable très positive et significative; une faible compression radiale (moins de 34%) n'a pas d'effet positif. Après 34%, l'effet de la compression radiale augmente de plus en plus vite. On peut expliquer ce phénomène par les différents mécanismes entre la compression radiale et la compression par presse à vis. Pendant une compression radiale, la force est subie dans la direction radiale et

très peu dans la direction tangentielle (sans contrainte). La compression radiale produit premièrement une extraction de l'air et de l'eau à bas taux de compression ce qui favorise par la suite l'absorption et la pénétration de la liqueur dans les blocs lors de l'imprégnation. Une plus forte compression radiale provoque une délamination de la structure ligneuse due au cisaillement des spécimens, ce qui augmente le volume de vide et la surface spécifique et favorise la pénétration. Cependant, avec le pressage par presse à vis, les spécimens sont soumis à plusieurs forces [45, 137], telles que la compression, le cisaillement et la torsion dans différentes directions. Donc, toutes les forces conduisent à la délamination, à la diminution de la grosseur moyenne des copeaux et à l'augmentation de la surface spécifique.

En comparant avec la compression radiale (CR) à la figure 7-10a, on a trouvé que, pour la compression par presse à vis (PV), les effets de l'épaisseur et de la longueur sont positifs sur l'absorption de NaOH (figure 7-10b), car l'absorption de NaOH augmente un peu avec l'augmentation de l'épaisseur et de la longueur du bloc. Autrement dit, après la compression par presse à vis (2:1, v/v), les spécimens plus épais et plus longs absorbent plus de NaOH. Ce résultat est contraire à celui de Parkinson *et al.* [44]: l'absorption de produits chimiques diminue avec l'augmentation d'épaisseur de bloc. La différence vient du traitement mécanique des spécimens suivant une méthode différente. Il faut se souvenir que, dans nos essais, tous les blocs de différentes tailles sont mélangés et passés dans l'alimentateur à bouchon (2:1). Parkinson *et al.* [44] ont étudié pour leur part trois fractions de copeaux. Chaque fraction est passée dans un alimentateur à bouchon de 3:1 et 5:1 (taux de compression). Lorsque des copeaux ou des blocs de différentes tailles passent dans un alimentateur à bouchon (zone de presse à vis), ce sont les copeaux ou les blocs ayant la plus grande dimension qui soutiennent les plus grandes forces, ce qui provoque plus de délamination de la matrice du bois. Les blocs de petites dimensions passent plus facilement et subissent moins de contraintes. Ces faits nous conduisent à la conclusion que la presse à vis peut grandement réduire l'effet de la dimension de copeaux sur l'absorption de produits chimiques. Cependant, lorsque la dimension de copeaux ou blocs est trop grande, ces copeaux ou blocs sont soumis à de trop fortes forces qui peuvent endommager les fibres en produisant de nombreuses particules fines. Lorsque les copeaux ou blocs trop courts et/ou minces sont soumis à des forces qui les brisent et diminuent

leurs grosses, l'effet de délamination pourrait être petit. Donc, il faut enlever des copeaux trop grands et trop petits avant la compression avec une presse à vis pour éviter la production de particules fines à partir des fibres de bois. L'uniformité de grandeur de copeaux est importante dans les mises en pâtes par exemple, MPC et MPCM [120, 121, 129]. Dans une certaine plage, la dimension des copeaux n'est pas un facteur très important dans la mise en pâtes mécaniques par une presse à vis [131], car la presse à vis provoque de la délamination et réduit la grosseur des copeaux.

7.3.2 Optimisation du procédé d'imprégnation

La figure 7-11 montre les lignes de contour d'absorption chimique des spécimens comprimés à 34% obtenue avec un temps d'imprégnation de 62,5 minutes. De cette figure, on peut voir que l'absorption de NaOH est élevée pour des blocs minces et courts; ces spécimens ont des passages de liquide relativement plus courts et une surface spécifique plus élevée. Les passages de liquide courts favorisent la pénétration de la liqueur et la surface spécifique plus élevée favorise la diffusion du NaOH vers les parois cellulaires. Une longueur restreinte améliore la pénétration de liquide, mais si la longueur est trop faible il pourrait se produire une réduction de la longueur moyenne des fibres.

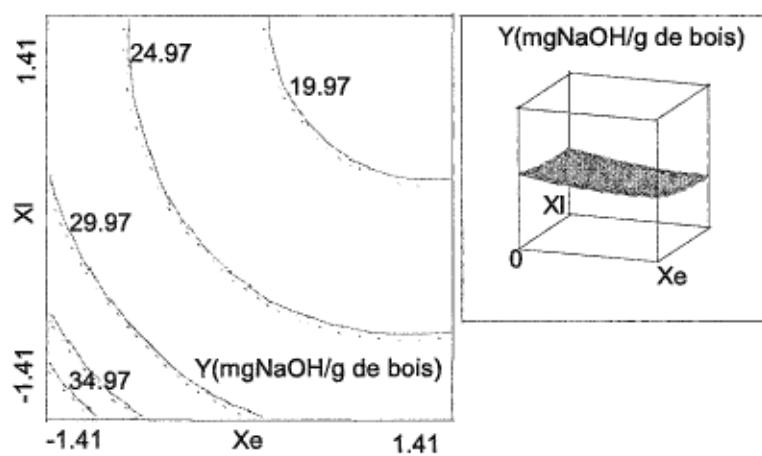


Figure 7-11 Surface de réponse pour l'absorption du NaOH (Xe et XI – Épaisseur et longueur du bloc en valeurs codées, Taux de compression = 34%, Compression radiale, Temps = 62,5 min)

La figure 7-12 montre les courbes de contour pour l'absorption de NaOH des blocs ayant une longueur moyenne et un temps d'imprégnation moyen. Il est clair que l'augmentation du taux de compression et une faible épaisseur améliorent l'absorption de NaOH. La compression radiale crée des macro et micro-fissures. Les macro-fissures augmentent principalement le volume total d'espace dans les spécimens, donc favorise la pénétration de la liqueur chimique. Les micro-fissures causent une augmentation de la surface spécifique et ainsi favorisent la diffusion de NaOH vers les parois cellulaires.

La figure 7-13 montre que le temps (X_t) est une variable très importante pour l'absorption de NaOH. Il est aussi très important pour la diffusion du NaOH. Mais le temps est une question d'efficacité ou d'économie pour les industries de pâtes et papiers. Donc, on ne peut pas espérer augmenter beaucoup la valeur de cette variable pour un usage industriel.

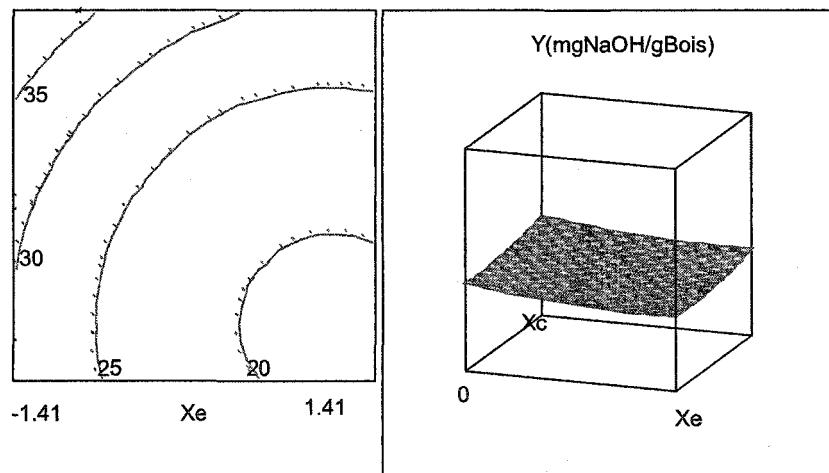


Figure 7-12 Surface de réponse pour l'absorption de NaOH (X_e et X_c – Épaisseur du bloc et taux de compression en valeurs codées, Longueur = 25 mm, Temps = 62,5 min, compression radiale)

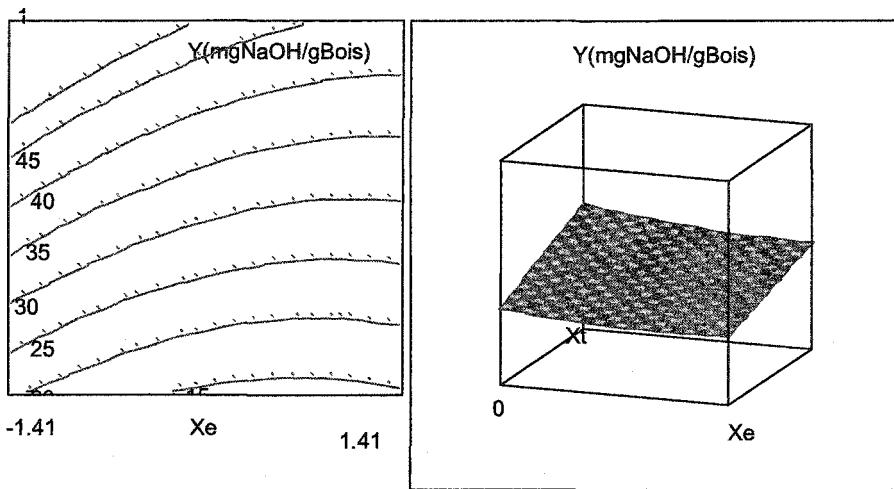


Figure 7-13 Surface de réponse pour l'absorption de NaOH (Xe et Xt – Épaisseur du bloc et temps en valeurs codées, Longueur = 25 mm, Taux de compression = 68%, compression radiale)

La figure 7-14 montre que, pour atteindre une valeur fixée d'absorption de NaOH, l'augmentation du taux de compression peut réduire beaucoup le temps nécessaire. Bien sûr, quand le taux de compression est plus élevé et le temps d'imprégnation plus long, l'absorption de NaOH est améliorée.

Dans cette partie du travail, les spécimens n'ont pas été dégazés. Donc, l'absorption de produits chimiques est influencée par la pénétration naturelle de la liqueur et la diffusion d'hydroxyde de sodium. On sait que la diffusion de produits chimiques nécessite du temps et que la vitesse de diffusion diminue avec le temps. Selon l'absorption du produit chimique, un taux de compression de 68%, une épaisseur faible, une longueur courte et un temps d'imprégnation long sont les meilleures conditions pour le procédé d'imprégnation chimique des copeaux.

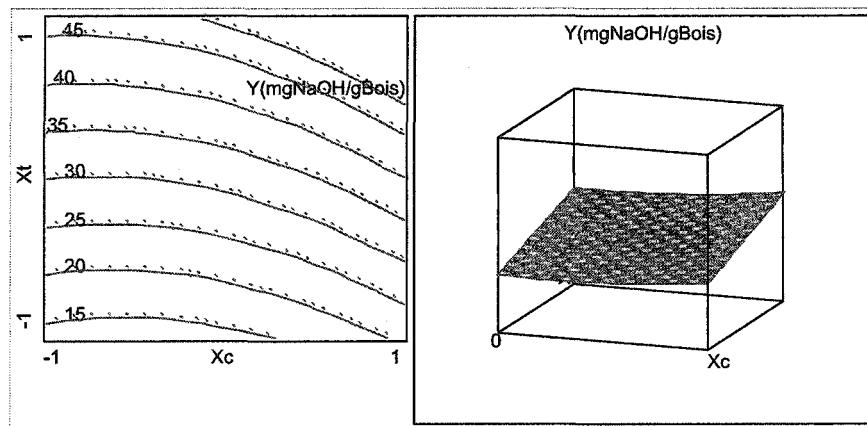


Figure 7-14 Surface de réponse pour l'absorption de NaOH (Xc et Xt – Taux de compression et temps en valeurs codées, Épaisseur = 4 mm (-1.414), Longueur = 25 mm, compression radiale)

Comme objectif principal, nous voulons obtenir une absorption maximale de produits chimiques pour maximiser l'effet du produit chimique et finalement améliorer les qualités physiques des pâtes et papiers. En pratique, le temps est trop long pour réaliser l'absorption maximale des produits chimiques. Notre but est d'introduire l'hydroxyde de sodium dans la lamelle mitoyenne composée afin de ramollir la lignine, favorisant ainsi la séparation des fibres et développant leur surface au cours du raffinage. Dans ce cas, la compression radiale sous vide est très importante pour réaliser notre objectif. Selon l'efficacité de production en usine et la distribution de produits chimiques, il est possible de choisir un certain temps d'imprégnation.

7.4 Distribution du sodium

7.4.1 Analyse par méthode qualitative

Les plans radiaux, obtenus à différentes distances dans la direction tangentielle tels qu'illustrés à la figure 7-15, montrent l'effet du taux de compression radiale sur la distribution de NaOH dans les directions radiale et longitudinale. Les échantillons qui ont été choisis pour l'analyse de la distribution de Na par SPX et leurs conditions d'imprégnation sont montrés au tableau 7-1. Les conditions d'imprégnation fixées sont le dégazage à 610 mm Hg et la température à

80°C. Les conditions variables sont le taux de compression (0%, 34% et 68%) et le temps d'imprégnation (1, 15 et 60 min). Le temps d'imprégnation est décidé selon la valeur d'absorption de NaOH comparable à celle des spécimens comprimés à 68% avec dégazage pendant 1 min. Dans ces figures, les distances dans les trois directions sont mesurées à partir de la surface exposée des spécimens et la profondeur se rapporte à la distance par rapport à la surface exposée. Selon la couleur des spécimens imprégnés et la distance de la surface, on peut évaluer qualitativement l'effet de la compression radiale sur la distribution de NaOH.

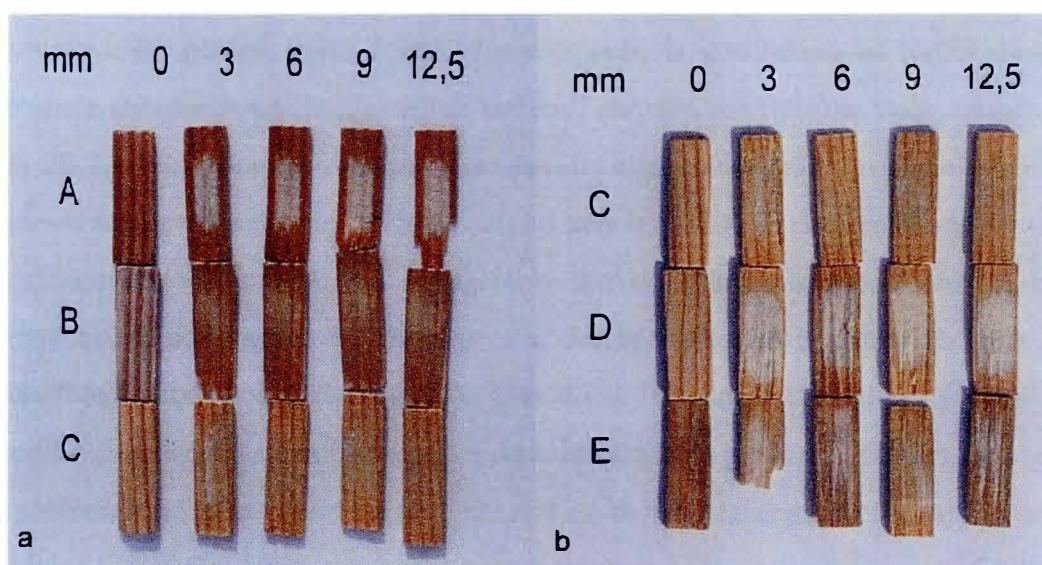


Figure 7-15 Distribution du sodium dans la direction tangentielle dans les spécimens imprégnés A, B, C, D et E illustrés au tableau 7-1

Tableau 7-1 Échantillons utilisés dans l'étude SPX et leurs conditions d'imprégnation

Conditions	Échantillons				
	A	B	C	D	E
Taux de compression radiale, %	0	34	68	0	34
Dégazage	1 min sous 610 mm Hg				
Température,	80°C				
Temps d'imprégnation, min	60	15	1	1	1
Absorption d'hydroxyde de sodium, mgNaOH/gBois	52,08	44,96	43,02	19,44	32,61

D'abord, on examine l'effet de la compression sur la distribution d'hydroxyde de sodium pendant une imprégnation de 1 minute. De la figure 7-15b, deux couleurs – foncée (brun pâle) et pâle (jaune pâle ou blanc) sont perceptibles. C'est l'effet de l'hydroxyde de sodium sur le bois qui se colore après imprégnation. La couleur pâle (jaune pâle ou blanche) se retrouve dans les régions internes des spécimens comprimés et au centre du spécimen témoin. La région centrale des spécimens témoins A et D nous montre une couleur pâle (jaune pâle) en forme de rectangle, ce qui ressemble aux résultats de Stone et Förderreuther [100]. Le spécimen témoin a une surface pâle beaucoup plus large en comparaison avec les spécimens comprimés. En général, après 1 min d'imprégnation, la distribution du NaOH dans les spécimens comprimés à 68% (C) est plus uniforme par rapport à celle des blocs comprimés à 34% (E). La distribution est moins uniforme dans les blocs non comprimés (D). La création de macro-fissures par compression à 68% observées avec le MEB (voir chapitre 5) peut expliquer l'augmentation d'uniformité de l'imprégnation chimique. En comparant E avec D, il est évident que la compression à 34% peut créer des micro-fissures invisibles au MEB. Ces micro-fissures contribuent très peu à l'augmentation de volume. Mais elles ont un impact significatif sur la distribution uniforme des produits chimiques par la modification des réseaux de passages lorsque les spécimens sont dégazés avant l'imprégnation. Donc, les tranches du spécimen E montrées à la figure 7-15 ont confirmé notre déduction présentée aux chapitres 5 et 6: la faible compression de 34% sûrement peut créer des micro-fissures invisibles au MEB mais qui influencent grandement la distribution des produits chimiques.

La couleur des tranches du spécimen D (figure 7-15) montre clairement que la pénétration de la liqueur de NaOH à 3% dans la direction longitudinale est plusieurs fois plus rapide que dans la direction radiale, car la couleur en direction longitudinale est plus étendue que celle dans la direction radiale. Ceci est facilement expliqué par les réseaux de passages : les lumens (20-30 μm) dominent en volume (de 93%) dans la direction axiale pendant que les rayons ligneux dans la direction radiale ne représentent que 6% en volume [9]. On constate la difficulté de pénétration de la liqueur dans la direction radiale. Ces observations sont en accord avec celles de Stone et Förderreuther [100]. La pénétration dans la direction tangentielle est très difficile aussi en comparant les cinq tranches de D. Les ouvertures (0,04 μm) des membranes de

ponctuations sont la seule voie pour la pénétration sur la surface radiale des fibres dans la direction tangentielle.

Il est aussi intéressant de comparer les spécimens A, B et C (figure 7-15a) présentant une absorption de NaOH presque égale pour les spécimens témoins et ceux comprimés à 34% et 68% respectivement, avec dégazage et à 80°C. Les couleurs dans les régions externes sont différentes en comparant A, B et C. De A à C, la couleur est de plus en plus légère. Il est clairement visible que la couleur varie avec le temps d'imprégnation (de jaune à brun) et devient de plus en plus foncée. Cet effet de NaOH est très connu dans la mise en pâte chimique de soude et Kraft. Donc, il est préférable de faire l'imprégnation durant un court temps pour éviter l'effet de noircissement et ainsi augmenter l'efficacité de blanchiment en usine. Selon les mécanismes d'imprégnation, après le dégazage des spécimens chauffés, c'est la pénétration qui domine pendant la première minute; ensuite ce sont la pénétration résiduelle et la diffusion qui contribuent à l'absorption des produits chimiques. De la surface au centre d'un même spécimen, on a trouvé que la surface colorée est de moins en moins grande, spécialement pour les spécimens témoins (A). De la distance colorée, on peut constater que la pénétration de la liqueur est principalement dans la direction longitudinale pour les spécimens témoins. Théoriquement, les rayons peuvent aider la pénétration de liqueur dans la direction radiale. Mais les photos indiquent clairement que les rayons ne sont pas un facteur important. En regardant les spécimens D, on peut voir l'effet de la pénétration résiduelle sur A. Mais la pénétration résiduelle n'est pas finie après l'imprégnation de 60 min pour le spécimen témoin, car la région centrale est encore toute blanche. Cependant, la compression élevée peut améliorer la pénétration dans les directions radiale et tangentielle (la pénétration radiale est mieux que celle dans la direction tangentielle après compression). Après la pénétration initiale, c'est la diffusion qui influence la distribution de NaOH. En comparant A avec D, B avec E (figure 7-15a et b), on trouve une couleur de plus en plus foncée avec le temps d'imprégnation et la diffusion est lente, car les régions centrales sont encore blanches et ne sont pas touchées par l'hydroxyde de sodium.

7.4.2 Analyse par méthode quantitative

Il est possible d'utiliser la spectroscopie de photoélectron de rayon X – SPX pour quantifier la concentration relative et la distribution de NaOH dans les spécimens imprégnés. La distribution dans les trois directions simultanément sur deux tranches centrales pour chaque spécimen a donc été analysée. Les deux tranches au centre sont choisies dans les directions radiale et tangentielle pour mesurer la distribution d'hydroxyde de sodium. Donc, la concentration pour un temps donné est la combinaison de la pénétration et de la diffusion provenant des trois directions.

Les figures de 7-16 à 7-18 montrent quantitativement l'effet du taux de compression sur la distribution de sodium sur les surfaces axiales aux centres des blocs par SPX. Pour réaliser l'examen par SPX, les spécimens étaient congelés dans l'azote liquide et séchés à froid sous vide. Quand les spécimens chauds (de 40 à 80 °C) sont mis dans l'azote liquide, l'évaporation ou l'éclatement (explosion) cause une perte de NaOH sur les régions périphériques des spécimens. De plus, le contact des surfaces des blocs avec les mains peut causer une certaine perte de NaOH pendant la préparation des tranches manuellement à l'aide d'une lame de rasoir. En conséquence, la perte d'élément de Na sur les régions périphériques des tranches résulte en une basse intensité de rayon-X de NaOH [94].

La compression radiale améliore la distribution de sodium dans la direction longitudinale (figure 7-16a, b et c). Après une minute d'imprégnation, le profil de distribution (concentration relative) de Na en fonction de la distance chute rapidement sauf durant les premiers millimètres. Cela indique que l'absorption de NaOH s'est effectuée principalement par pénétration [153] particulièrement dans la direction longitudinale et la concentration faible de Na aux points externes est causée par la perte de liquide dans les lumen près de la surface (longueur des fibres 3,5 mm). Cependant la compression peut grandement favoriser la pénétration de NaOH à 3% dans la région centrale en favorisant la pénétration radiale et la diffusion dans la région externe dues à l'augmentation de la surface spécifique.

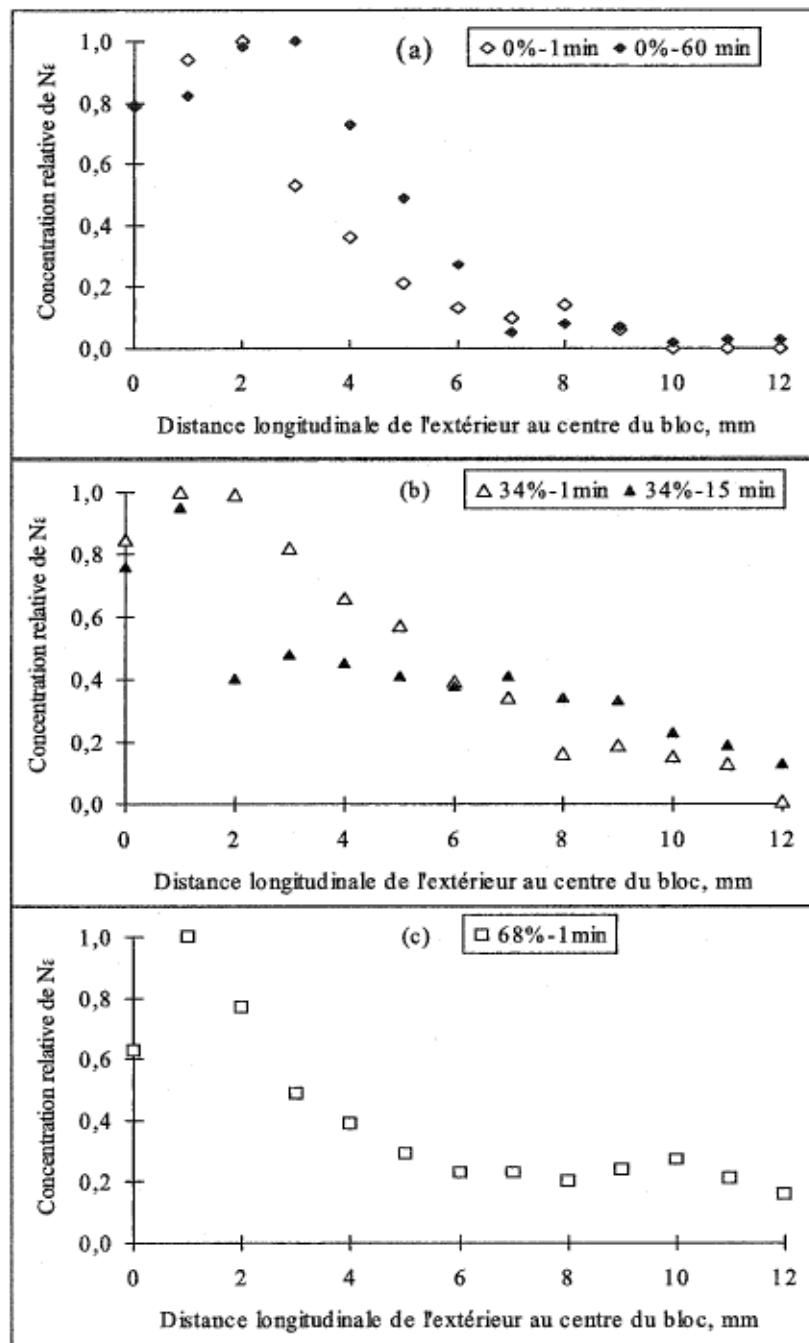


Figure 7-16 Profils de concentration longitudinale de Na après imprégnation des spécimens de pin gris avec une liqueur de NaOH à 3%

La concentration relative de sodium dans les régions interne et centrale augmente avec l'augmentation du taux de compression. C'est la compression qui cause la modification des réseaux dans la direction radiale et l'augmentation du volume de vide. La courbe de

distribution du sodium est aléatoire, dû à la création non-uniforme de macro-fissures. Le maximum de concentration en sodium se produit au point où de grandes macro-fissures se forment dans la direction radiale et tangentielle, ce qui favorise la pénétration initiale et la diffusion chimique.

Le profil de distribution de sodium change avec l'augmentation du temps d'imprégnation (figure 7-16a et 7-16b), mais le changement est différent pour les spécimens témoins et comprimés à 34%. Pour le spécimen témoin, c'est dans la région externe que la concentration de produits chimiques augmente beaucoup : une contribution importante de la diffusion et également de la pénétration résiduelle se fait continuellement vers les régions internes. Cela indique une combinaison de pénétration de la liqueur chimique et de diffusion du produit chimique, c'est ce qui a causé le changement du profil de distribution de Na. Le taux de diffusion de produits chimiques dans la direction longitudinale est environ la moitié de celui de l'eau [8]. Pour les spécimens sans compression (figure 7-16a), on a observé que la distribution de Na dans la direction longitudinale s'améliore très peu vers la région centrale. L'augmentation de Na dans la direction longitudinale est la pénétration résiduelle ou complète dans les régions internes et centrales après la pénétration initiale. La liqueur pénétrée dans les spécimens se diffuse principalement vers les parois cellulaires saturées d'eau, où il existe un plus grand gradient de concentration de NaOH. Pour cette raison, il est possible de trouver une augmentation de la concentration chimique dans les régions externes et une concentration relative plus basse dans les régions internes. Dû à la diffusion vers les directions transversales, la concentration de NaOH à certains points dans les réseaux est réduite à un certain moment. Donc, la diffusion existe dans la direction longitudinale aussi, sauf que c'est un équilibre dynamique. Cependant dans le spécimen faiblement comprimé, l'amélioration de la distribution de Na est dans la région interne (figure 7-16b), principalement parce que les réseaux dans la direction radiale sont grandement améliorés. Donc la pénétration résiduelle et la diffusion améliorent beaucoup la distribution de Na dans la région centrale.

La figure 7-17 montre les profils de distribution de Na dans la direction radiale. Pour les spécimens témoins après dégazage, on trouve que la liqueur pénètre beaucoup moins, autant

en terme de quantité que de profondeur, dans la direction radiale (7-17a) que longitudinale (figure 7-16a), car les rayons ligneux représentent seulement 6% du volume total et contribuent principalement à la pénétration de la liqueur dans la direction radiale, qui est beaucoup moins importante sur l'absorption de liquide. Le rapport de coefficient de perméabilité longitudinale sur le coefficient de perméabilité radiale est dans la plage de 50-200 [8] pour les copeaux de bois. Cependant on note qu'une compression radiale (figures 7-17b et 7-17c) favorise le taux de pénétration de NaOH dans la direction radiale et que le taux de compression élevé augmente l'uniformité de distribution des produits chimiques. Par rapport aux témoins (figure 7-17a), on a trouvé qu'une compression (figure 7-17b et 7-17c) favorise la pénétration de la liqueur et améliore beaucoup l'uniformité de distribution du sodium dans la direction radiale. La faible compression a provoqué quand même des microfissures, ce qui modifient les réseaux et favorisent le dégazage et la pénétration de la liqueur, augmentant la surface spécifique qui favorise la diffusion du NaOH et le gonflement des parois cellulaires. Après 1 min d'imprégnation, les concentrations au centre sont 0%, 10% et 18% pour les spécimens comprimés à 0%, 34% et 68%, respectivement. Donc, la compression améliore la distribution de sodium dans la direction radiale et l'amélioration est de plus en plus marquée avec l'augmentation du taux de compression.

L'effet du temps d'imprégnation pour le spécimen témoin est illustré aux figures 7-17a et 7-17b. La pénétration complète ou résiduelle et la diffusion d'hydroxyde de sodium dans la direction radiale causent l'augmentation de la concentration de Na. Le taux de diffusion dans la direction transversale est 3-6% de celle dans l'eau [8]. Cependant, la littérature indique que des alcalis, qui gonflent considérablement la structure du bois, sont véritablement capables de se répandre à un taux presque égal dans toutes les directions, tandis que les sels et les acides neutres se répandent plus rapidement dans la direction longitudinale que dans la direction transversale [107]. La liqueur de NaOH à 3% est une base forte (pH13-14). Mais la matrice ligneuse consiste en des groupements acides, comme $-\text{COOH}$ dans les hémicelluloses et la lignine, Ph-OH dans la lignine, qui a neutralisé le pH de la liqueur, localement.

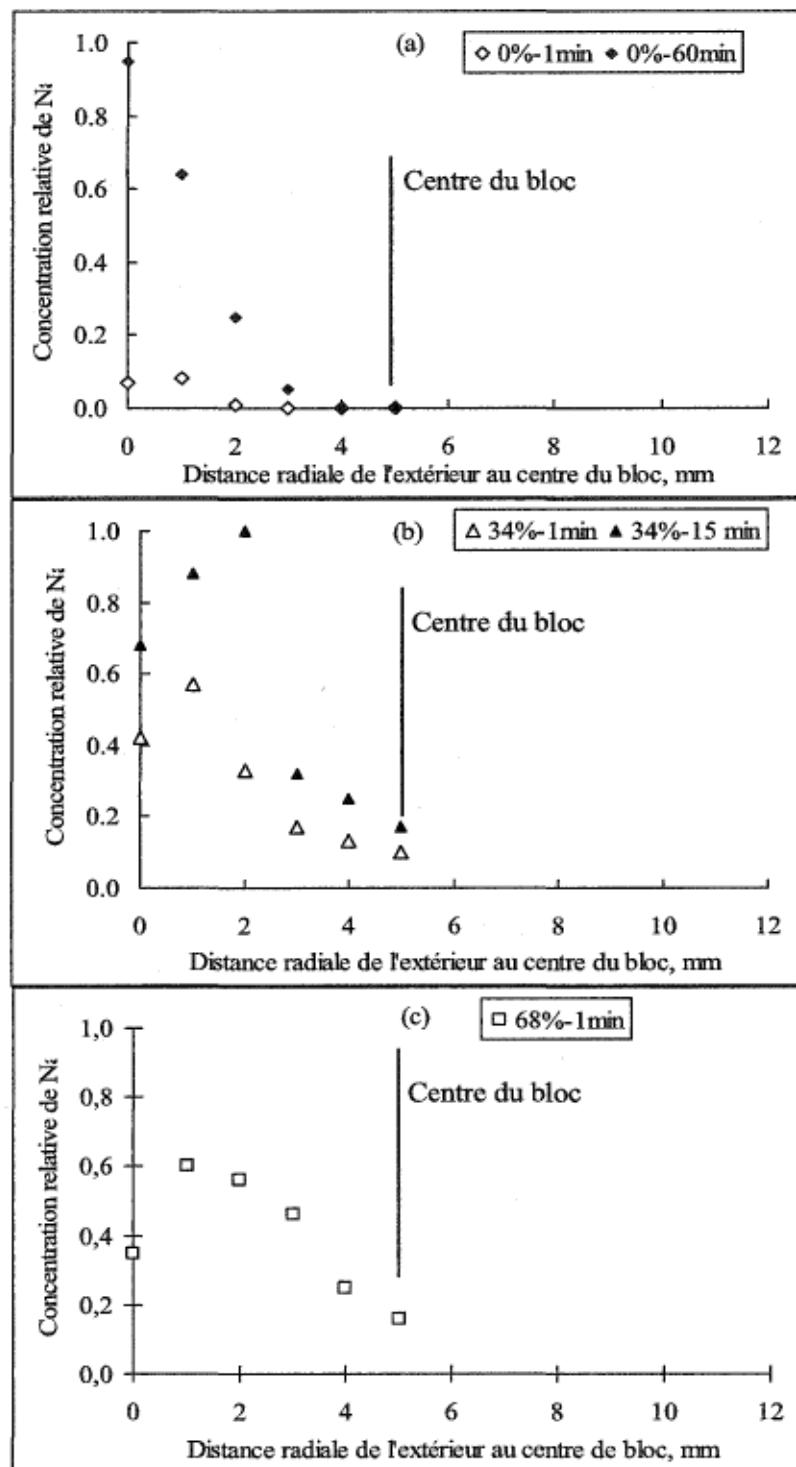


Figure 7-17 Profils de concentration radiale après imprégnation de spécimens de pin gris : (a) 0% (b) 34%, et (c) 68% de compression

Même si le pH local de la liqueur dans le bois atteint de 12,8 à 13,5, il y a une augmentation considérable du taux de diffusion dans les directions transversales, tandis que la diffusion longitudinale n'est pas changée. Donc, l'épaisseur des copeaux sans traitement mécanique est un facteur très important. Pour obtenir une imprégnation complète, une faible épaisseur est critique. Le profil de distribution de Na pour un long temps d'imprégnation (figure 7-17a et 7-17b) est plus haut que celui à 1 min. L'explication apportée pour la direction longitudinale s'applique aussi pour la direction radiale.

Le montant total de liqueur pénétrée à un certain moment est théoriquement la somme de la liqueur qui a pénétré par la direction longitudinale, la direction radiale et la direction tangentielle. Ainsi, le montant total de sodium à certain moment est la somme de la pénétration de la liqueur et de la diffusion. Les profils de distribution de sodium des spécimens témoins (figure 7-18a) dans la direction tangentielle nous montrent la difficulté de pénétration dans la direction tangentielle car les concentrations de sodium tombent abruptement de certains niveaux à zéro après 1 mm et 5 mm pour 1 min et 60 min, respectivement. Cela indique que la concentration de sodium contribue principalement à la pénétration dans la direction longitudinale et que la pénétration dans la direction tangentielle est négligeable.

Les ponctuations de trachéides sur les parois cellulaires radiales sont la seule voie dans la direction tangentielle. Les micro-pores (ouvertures) dans la margelle des membranes de ponctuations sont souvent les structures limitant la perméabilité [163]. Les distributions de sodium dans la direction tangentielle des spécimens comprimés varient de façon aléatoire. Cela indique que la compression influence la direction radiale plus que tangentielle, en accord avec les conclusions observées avec le MEB. Basé sur la distribution de Na dans la direction longitudinale des spécimens comprimés, on constate que la compression peut améliorer l'efficacité du dégazage dans la direction radiale. Après compression, la pénétration initiale augmente et la pénétration complète ou résiduelle est plus facile, car les réseaux dans la direction radiale sont plus nombreux et plus courts. Pour obtenir la même absorption de NaOH, la compression de 68% requiert beaucoup moins de temps (de 60 à 1 min) et améliore l'uniformité de distribution du Na.

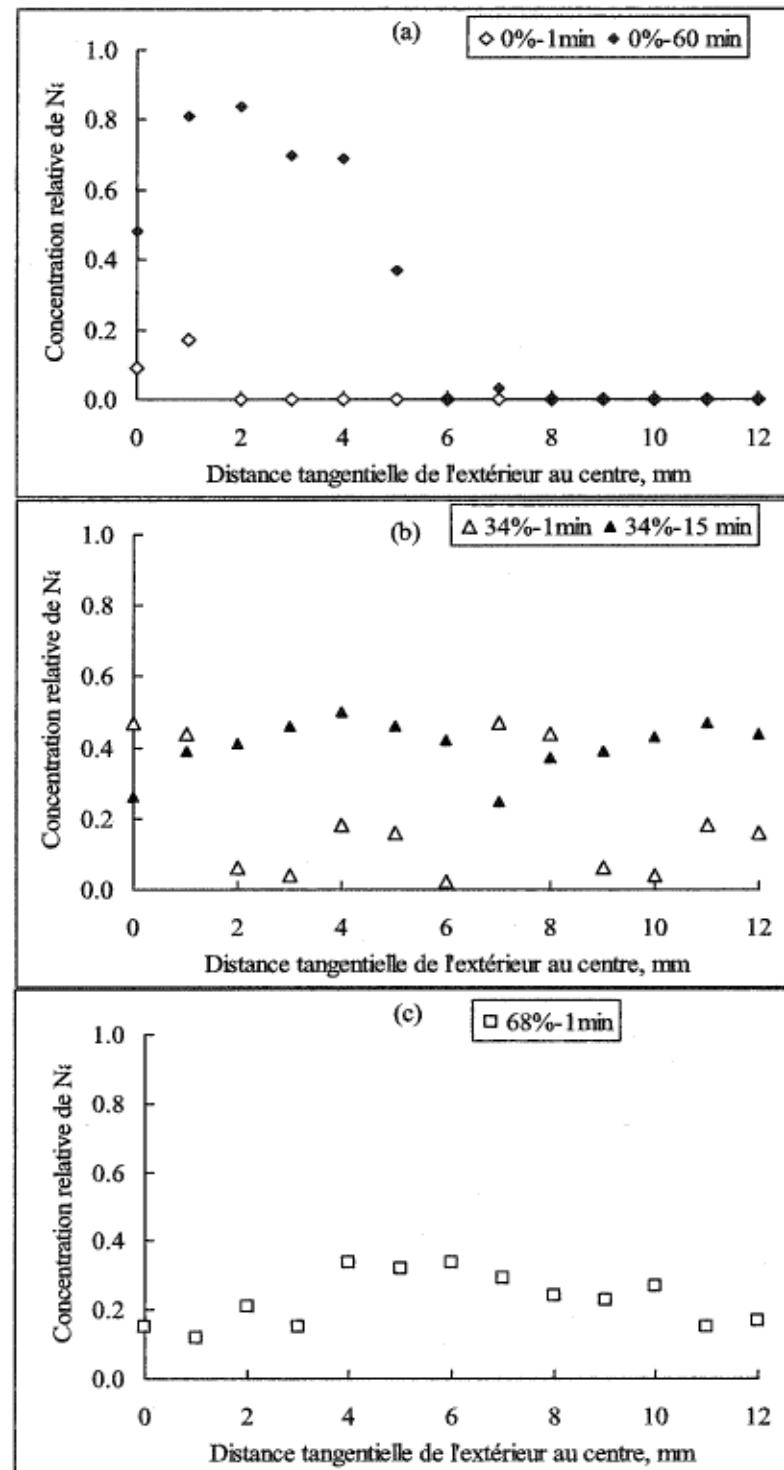


Figure 7-18 Profils de concentration tangentielle après imprégnation de spécimens de pin gris avec une liqueur de NaOH à 3%

En comparant les profils des spécimens comprimés à 68% avec 1 min d'imprégnation et des spécimens comprimés à 34% traités en 15 min, on constate que le temps est très important pour la diffusion et l'uniformité de la distribution dans les parois cellulaires pour une absorption similaire.

La compression radiale provoque donc la création de micro et macro-fissures, améliore les réseaux de passages de la liqueur. Les micro-fissures augmentent principalement la surface spécifique, ce qui favorise la diffusion du produit chimique (NaOH). Les macro-fissures augmentent principalement le volume de vide, ce qui augmente et favorise la pénétration de la liqueur (NaOH). L'effet du produit chimique (NaOH), soit un gonflement des parois cellulaires, contribue aussi à l'uniformité de distribution du NaOH. Une compression radiale améliore surtout la perméabilité transversale. Donc, elle diminue la différence de perméabilité entre les directions longitudinale et transversale et favorise l'uniformité de distribution du NaOH.

7.5 Comparaison des méthodes d'imprégnation

En pratique, quand les spécimens sont comprimés, l'air dans les spécimens est expulsé jusqu'à un certain point. En même temps, la structure du bois se déforme et des fissures se produisent. Quand les spécimens sont libérés de nouveau, une pression négative est automatiquement créée dans les pores, capillaires et fissures. Donc, la compression des blocs dans la liqueur peut avoir deux fonctions : augmenter la vitesse de pénétration de la liqueur et augmenter la quantité de pénétration de la liqueur. En fait, quand les spécimens comprimés sont relâchés dans une liqueur, ils absorbent la liqueur chimique comme une éponge. Le degré de vide créé dépend du degré de compression radiale. Nos procédés d'imprégnation sous une pression négative avec des spécimens comprimés sont semblables au procédé d'expansion de spécimens comprimés dans la liqueur chimique. La différence entre les deux procédés est le nombre d'étapes et la pression négative. Le procédé indirect a besoin de deux étapes et le procédé direct a seulement besoin d'une étape.

Les résultats d'expérience à partir de ces deux techniques sont montrés au tableau 7-2. Le but ici est d'évaluer la ressemblance entre notre opération chimique d'imprégnation et les blocs comprimés puis libérés dans la liqueur chimique. Comparant la pénétration de liqueur de NaOH à 3% après une minute d'imprégnation, on a constaté que les spécimens comprimés puis imprégnés dans le système sous vide (610 mm Hg) peuvent absorber plus de liqueur chimique (10g de liqueur/12g de bois à une humidité de 39% sec au four) que ceux subissant une compression suivie d'un relâchement dans la liqueur (10 g de la liqueur/16 g de bois à une humidité de 39%). Ce phénomène peut être expliqué selon deux points de vue. Premièrement, il est possible qu'une compression radiale de 68% ne puisse pas enlever la même quantité d'air dans les spécimens que sous une pression de 150 mm Hg pour une minute. Deuxièmement, dans notre expérience il y a un plateau lourd qui est mis sur les quatre blocs. Quand la force de compression de la presse est libérée, le plateau lourd reste sur les blocs pendant un certain temps avant de pouvoir être retiré. Ainsi, les blocs comprimés n'ont pas la liberté de reprendre complètement leur volume initial lorsque la force de compression est relâchée.

Tableau 7-2 Comparaison des deux procédés d'imprégnation

Items Conditions	68% compression et relâchement dans la liqueur				68% compression + imprégnation à 150 mm Hg		
	20°C		40°C		40°C	60°C	80°C
Poids avant imprégnation	16,23	16,3	16,79	16,81	12	12	12
Poids après imprégnation	28,4	26,54	26,35	27,54	22,12	21,78	22,59
mg NaOH/g Bois poids	30,68	25,73	23,72	26,54	36,23	33,97	37,07
mg NaOH/g Bois titrage	37,04	27,38	41,27	46,32	39,46	32,62	36,83
							43,02

7.6 Conclusions

En analysant les résultats concernant la pénétration de la liqueur chimique dans les procédés d'imprégnation, les conclusions suivantes peuvent être obtenues.

I. Effets sur l'absorption de la liqueur chimique

- 1) Les effets de diverses variables sur l'absorption de la liqueur (NaOH à 3%) ressemblent à ceux sur l'absorption d'eau. La compression et le gradient de pression sont deux variables importantes sur l'absorption de liqueur par le mécanisme de pénétration. Une interaction positive existe entre la compression radiale et le gradient de pression.
- 2) Le degré de pénétration de la liqueur augmente généralement avec le taux de compression radiale. Une basse déformation peut seulement favoriser la pénétration initiale sous vide.
- 3) La pénétration de liqueur atteint un plateau dans un court temps, dans les procédés d'imprégnation sous vide (610 mm Hg), par contre, la pénétration de la liqueur n'atteint pas un plateau après 4 heures dans les procédés d'imprégnation sans vide.
- 4) Le gradient de pression est le facteur principal pour améliorer la vitesse de pénétration de la liqueur; il diminue grandement le temps requis pour atteindre le plateau du degré de pénétration (spécimens saturés de liqueur).
- 5) La température influence aussi le degré de pénétration; son influence sur l'absorption de liqueur augmente lorsque l'imprégnation est faite sous vide. Le temps n'est pas un facteur important pour la pénétration de la liqueur quand l'imprégnation est effectuée sous une pression de 150 mm Hg, mais il est significatif lorsque le vide a augmenté à 760 mm Hg.
- 7) Les conditions d'imprégnation chimique optimale obtenues pour atteindre une absorption de liqueur maximale sont: 68% de compression radiale, dégazage à 610 mm Hg, température de 80 °C et temps de 5-15 minutes.

II. Effet sur l'absorption de produits chimiques

La compression radiale et le gradient de pression augmentent principalement l'absorption d'hydroxyde sodium par le mécanisme de pénétration de la liqueur (NaOH à 3%).

- 1) Il y a une interaction positive entre la compression radiale et le gradient de pression sur l'absorption chimique par la pénétration de liqueur chimique.
- 2) La compression radiale et le gradient de pression ont aussi des effets légers sur l'absorption chimique par diffusion dus à l'augmentation de la surface spécifique et des réseaux de passages et à la réduction de la distance de diffusion.

- 3) La température est une variable importante sur l'absorption de produits chimiques, principalement par diffusion et légèrement par pénétration.
- 4) L'absorption des produits chimiques a augmenté avec le temps d'imprégnation pendant les quatre heures.
- 5) Le mécanisme de diffusion des produits chimiques se fait beaucoup plus lentement que la pénétration.
- 6) La compression radiale et le gradient de pression peuvent diminuer grandement le temps d'imprégnation pour obtenir une valeur fixe d'absorption d'hydroxyde sodium.
- 7) Une absorption maximale de produits chimiques peut être obtenue avec les conditions suivantes: 68% de compression radiale, pression de 150 mm Hg, 80 °C et 4 heures.

III. Effets sur l'absorption de produits chimiques

- 1) Dans la compression radiale, la dimension des blocs ou des copeaux est un facteur important sur l'absorption de NaOH. L'épaisseur et la longueur ont un effet négatif. L'épaisseur est un facteur plus critique que la longueur.
- 2) Le temps est un facteur très significatif sur l'absorption de NaOH dans le cas d'un procédé où il y a peu de pénétration.
- 3) Dans la presse à vis, la dimension des blocs n'est pas très critique. L'épaisseur et la longueur des blocs ont des effets positifs.
- 4) La compression par presse à vis est un traitement mécanique plus efficace que la compression radiale statique sur l'absorption du NaOH.

IV. Effets des variables (Com et t) sur la distribution de NaOH

La pénétration de la liqueur s'effectue principalement dans la direction longitudinale par les passages des lumens.

- 1) La compression radiale améliore la distribution des produits chimiques dans les directions radiale et longitudinale. Donc, l'uniformité de distribution d'hydroxyde de sodium est modifiée par la compression radiale.
- 2) L'uniformité de la distribution d'hydroxyde de sodium dans le bloc imprégné augmente avec l'augmentation du taux de compression radiale.

- 3) La compression radiale augmente l'uniformité de distribution d'hydroxyde de sodium et diminue beaucoup le temps pour obtenir la même quantité de NaOH absorbé.
- 4) Le temps est un facteur important pour la diffusion des produits chimiques. Mais la diffusion est très lente dans la matrice du bois comparativement à la pénétration de la liqueur dans la direction longitudinale.
- 5) C'est la diffusion qui contrôle l'uniformité de distribution des produits chimiques dans les parois cellulaires.

V. Comparaison entre les deux techniques d'imprégnation

La méthode dans laquelle la liqueur de NaOH à 3% est introduite dans le récipient qui contient les blocs comprimés et dégazés est semblable à la méthode dans laquelle les blocs sont comprimés directement dans la liqueur chimique.

Chapitre 8 - RÉSULTATS ET DISCUSSION- PARTIE IV : MODÉLISATION

Dans ce chapitre, notre but est de développer des modèles mathématiques pour estimer et prédire l'absorption des liquides et l'absorption d'hydroxyde de sodium dans des blocs de pin gris, selon les données expérimentales et la connaissance des lois fondamentales de pénétration des liquides et de diffusion des produits chimiques à l'aide du *Solveur d'Excel* de Microsoft, et ainsi fournir l'information quantitative pour optimiser le processus d'imprégnation chimique du bois au cours de la mise en pâte chimico-mécanique.

8.1 Développement du modèle dans excel

Le *Solveur* de Microsoft Excel est un outil très utile pour ajuster les paramètres d'une équation non linéaire mettant en relation la réponse et les variables selon les données expérimentales. Dépendant de la situation, l'une des trois façons suivantes peut être choisie: maximisation, minimisation ou égalité à une valeur de la somme des variances entre les résultats et les valeurs prédictes. Dans cette étude, on doit minimiser la somme de variances. Par ailleurs, on a employé le logiciel *JMP IN* pour modéliser l'absorption de NaOH basé sur la dimension des blocs de bois et le taux de compression.

8.1.1 Forme des modèles

Tout d'abord, on doit choisir un modèle propre à chacune des réponses indépendantes (la teneur en eau, l'absorption de liquide chimique, et l'absorption de NaOH) d'après la tendance des réponses indépendantes en fonction du temps d'imprégnation. Nous avons essayé quatre types d'équation non linéaire dans *Excel* qui sont : a) l'équation logarithmique, b) l'équation polynomiale, c) l'équation de puissance et d) l'équation exponentielle. Ensuite, le modèle le plus représentatif du comportement de cette variable est choisi, donc celui qui a une plus grande valeur de coefficient de régression (R^2).

8.1.1.1 Absorption d'eau

La figure 8-1 montre l'exemple de la teneur en eau en fonction du temps d'imprégnation avec quatre types d'équations non linéaires et leurs coefficients de régression (R^2), obtenues pour le processus d'imprégnation à 60°C après dégazage à 410 mm Hg. Ce sont a) l'équation logarithmique, b) l'équation polynomiale, c) l'équation de puissance et d) l'équation exponentielle.

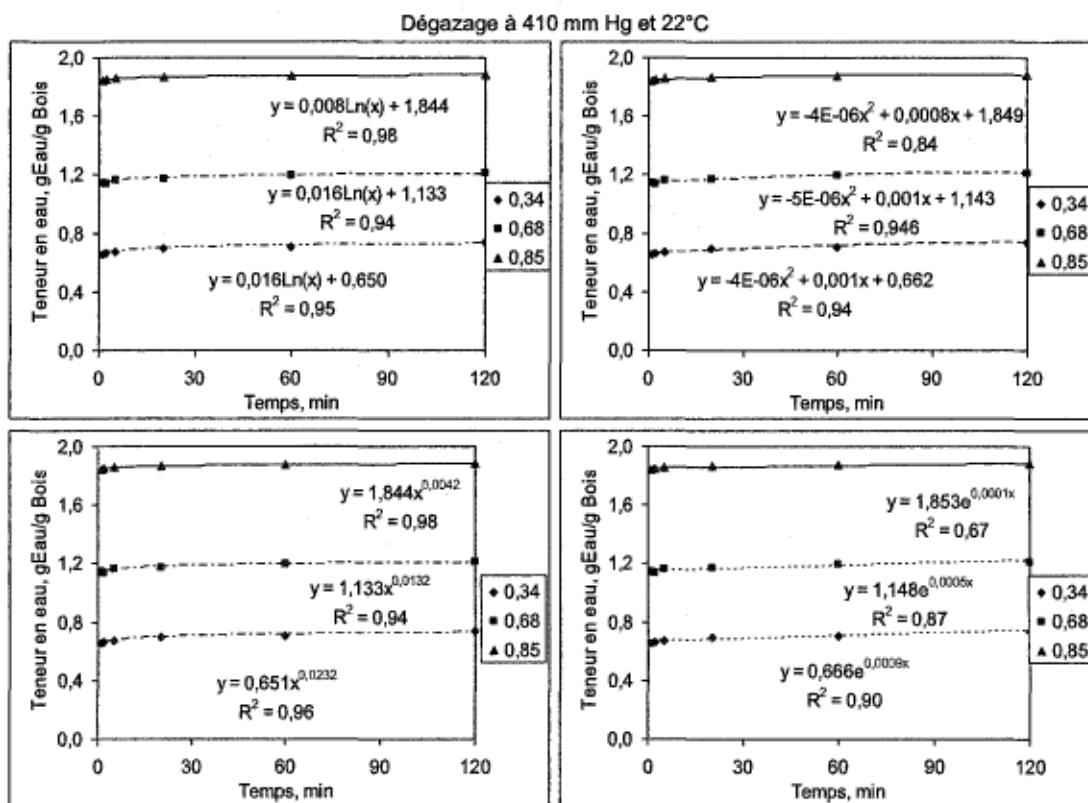


Figure 8-1 Exemple de détermination du type de modèle pour l'absorption d'eau

D'après les coefficients de régression (R^2) et l'ajustement visuel des courbes prédictives, il est clair que les équations exponentielles et polynomiales ne peuvent pas bien expliquer la teneur en eau en fonction du temps d'imprégnation surtout dans la période d'imprégnation initiale. Les coefficients de régression (R^2) des équations logarithmique et de puissance sont élevés et montrent un ajustement visuel plus intéressant. Au point de vue statistique sur toutes les courbes, l'équation de puissance est un peu meilleure que l'équation logarithmique. Donc, on

utilise l'équation de puissance ($Y=aX^b$) pour décrire la teneur en eau avec le temps d'imprégnation.

8.1.1.2 Absorption de NaOH à 3%

La figure 8-2 illustre les exemples de quatre modèles non linéaires dans les processus avec et sans dégazage. Par la même méthode, on peut trouver le type d'équation de puissance qui permet aussi un meilleur ajustement pour l'absorption de liqueur (NaOH à 3%), tel que démontré à la figure 8-2.

8.1.1.3 Absorption de NaOH

Tout d'abord, on a étudié l'absorption totale d'hydroxyde de sodium. La figure 8-3 montre que l'équation de puissance est la plus appropriée pour modéliser l'absorption totale de produits chimiques. Cependant, d'après notre connaissance sur l'absorption de produits chimiques, on sait que l'absorption de NaOH vient de deux différents phénomènes; la pénétration et la diffusion. Selon cette relation, on suppose que l'absorption de produits chimiques par pénétration est égale au produit de l'absorption de liqueur chimique et de la concentration de la liqueur originale. De plus, l'absorption de produits chimiques par diffusion est égale à la différence entre l'absorption totale de produits chimiques et l'absorption de produits chimiques par pénétration.

La figure 8-4 montre l'absorption de NaOH par diffusion calculée par cette méthode. Selon les coefficients de régression, on peut obtenir à peu près la même conclusion, soit que le modèle de puissance est correct pour étudier l'absorption de produits chimiques par diffusion.

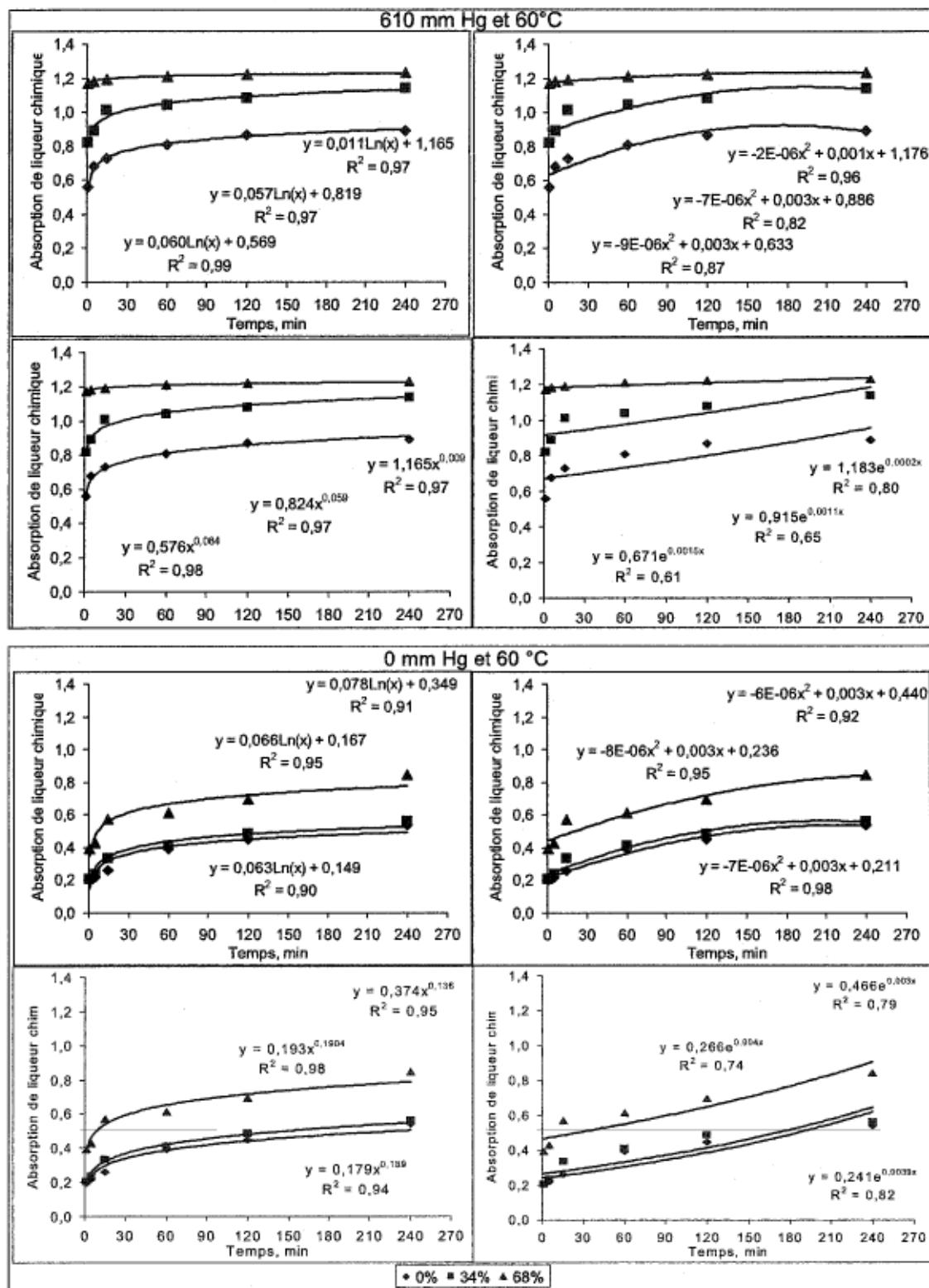


Figure 8-2 Détermination du type de modèle pour l'absorption de NaOH à 3%

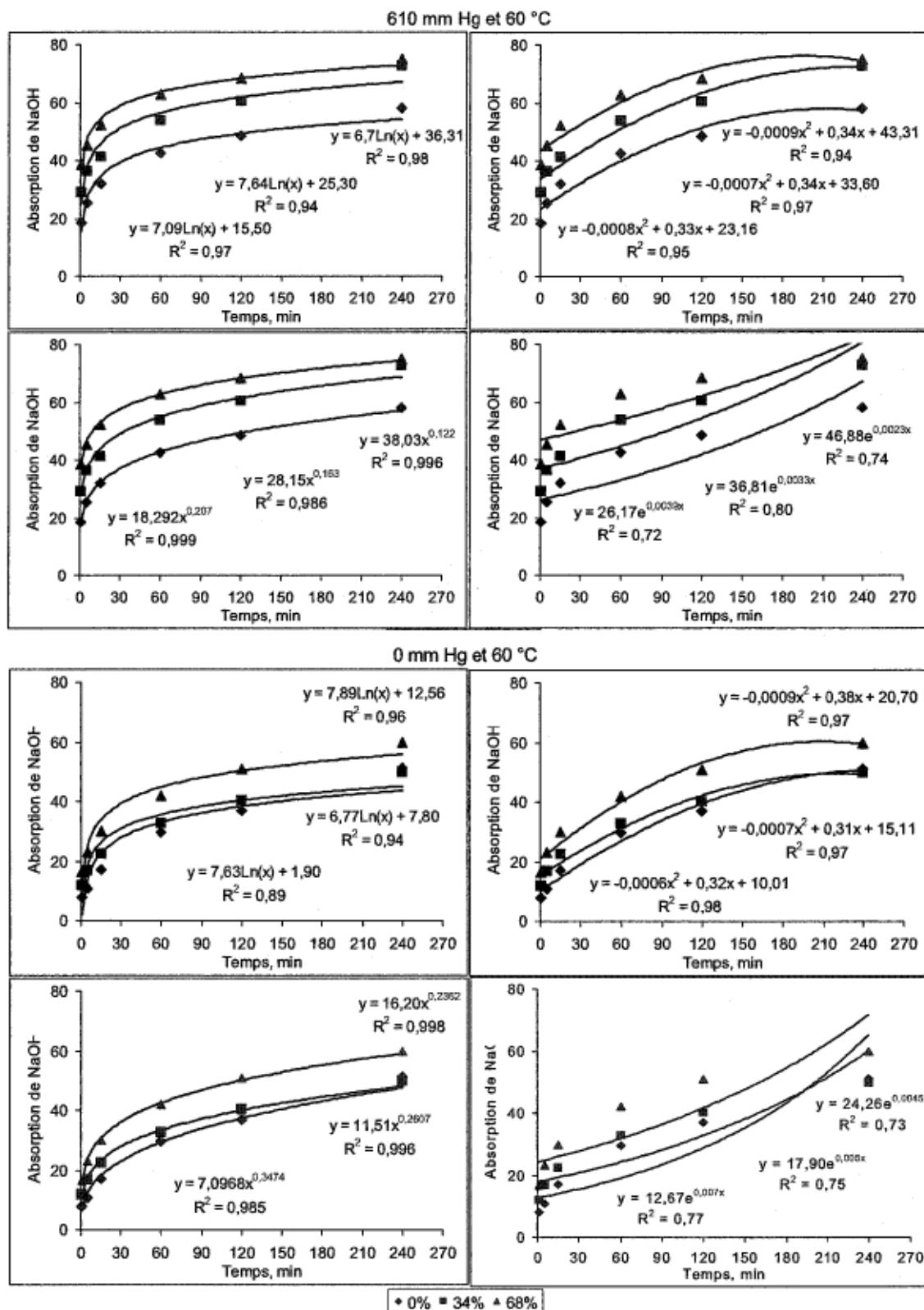


Figure 8-3 Détermination du type de modèle pour l'absorption totale de NaOH

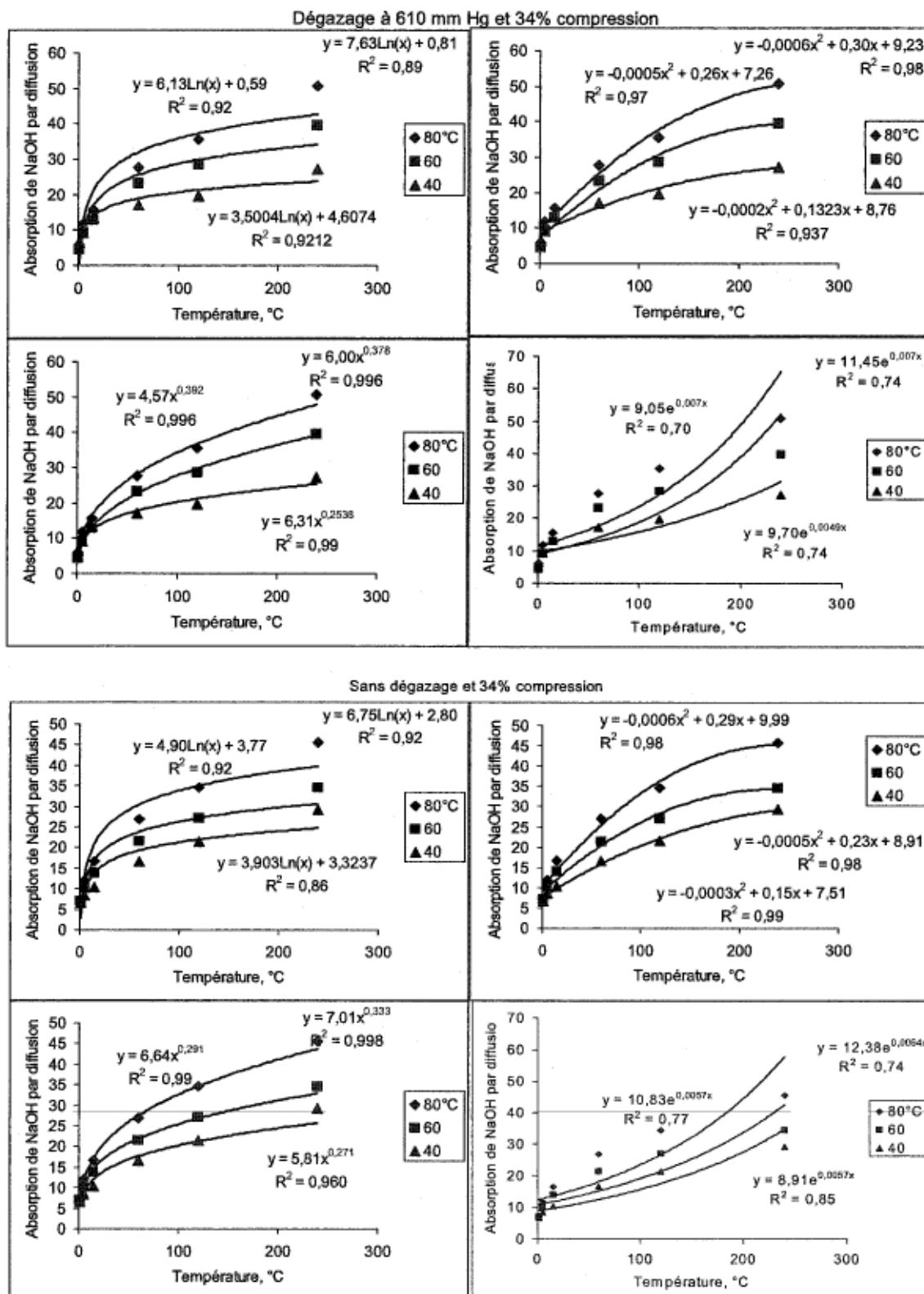


Figure 8-4 Détermination du type de modèle pour l'absorption NaOH par diffusion

8.1.2 Détermination des paramètres des équations

Après avoir décidé de la forme du modèle ($Y = aX^b$ ou $Y = A + aX^b$), on doit trouver une bonne relation quantitative entre les réponses dépendantes et les variables indépendantes qui sont la compression radiale et le gradient de dégazage. Autrement dit, dans l'équation $Y = aX^b$, le coefficient a et l'exposant b sont en fonction des variables indépendantes. Dans cette partie, on essaie de trouver des modèles pour décrire a et b .

8.1.2.1 Absorption d'eau

Des relations entre la réponse et les variables indépendantes dans quatre modèles non linéaires sont montrées aux figures 8-5 et 8-6, respectivement, pour la compression radiale et le gradient de dégazage. La figure 8-5 montre que les coefficients de régression (R^2) des équations polynomiale et de puissance sont plus élevés que ceux des équations logarithmique et exponentielle. Également, la figure 8-6 illustre que les équations polynomiale et de puissance sont mieux que celles logarithmique et exponentielle pour décrire la relation entre la teneur en eau et le gradient de dégazage. Lors de l'utilisation du *Solveur* on peut faire la modélisation sur l'absorption d'eau en se concentrant sur ces deux types d'équation pour réduire les travaux.

8.1.2.2 Absorption de NaOH à 3%

La figure 8-7 illustre la fonction du taux de compression radiale sur l'absorption de la liqueur - NaOH à 3%. Il y a seulement deux types de fonctions non linéaires, dû au taux de compression qui inclut la valeur de zéro. Donc, on doit essayer ces deux formes pour trouver la meilleure. La figure 8-8 montre la fonction de la température sur l'absorption de la liqueur - NaOH à 3%. De la figure 8-8, il n'est pas facile de choisir le type d'équation pour la température.

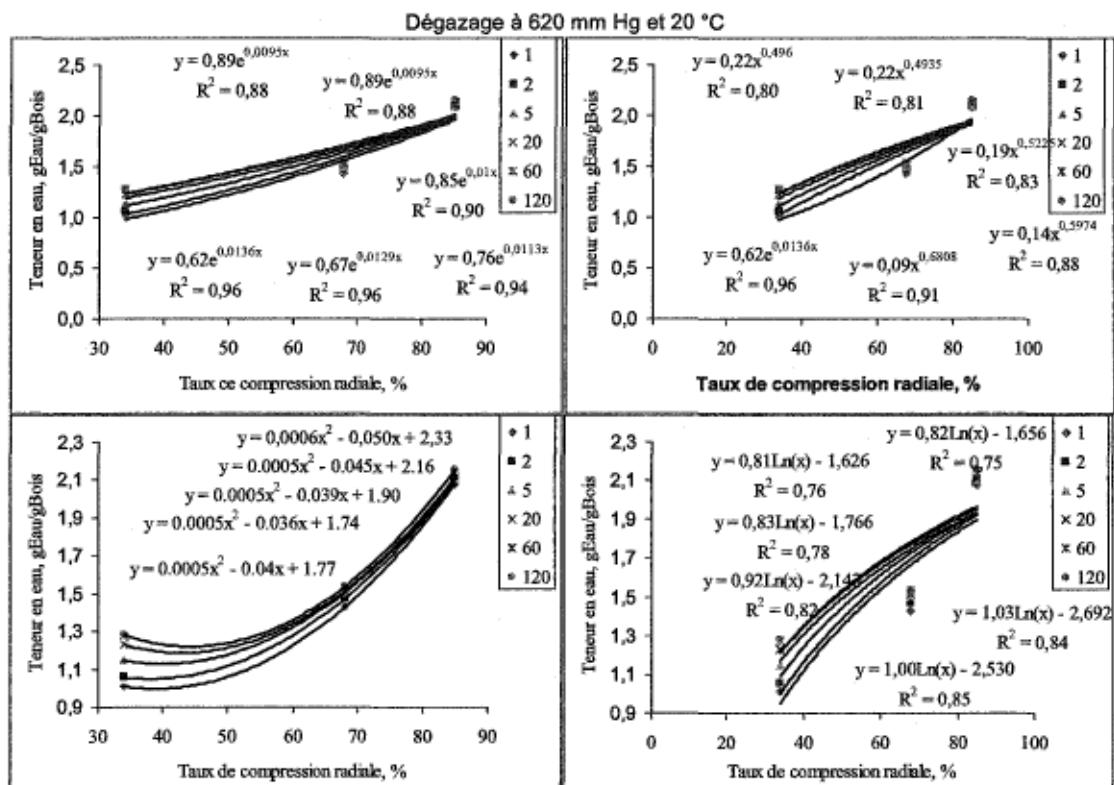


Figure 8-5 Détermination des bonnes fonctions pour la teneur en eau et la compression radiale

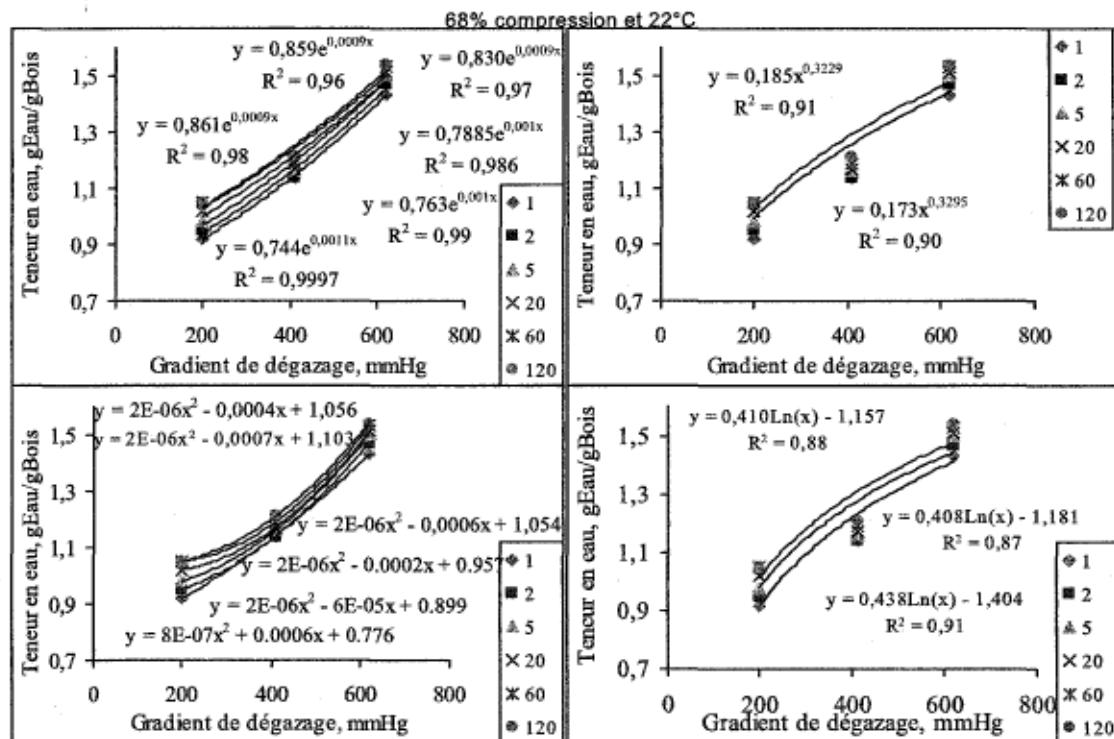


Figure 8-6 Détermination des bonnes fonctions pour la teneur en eau et le gradient de dégazage

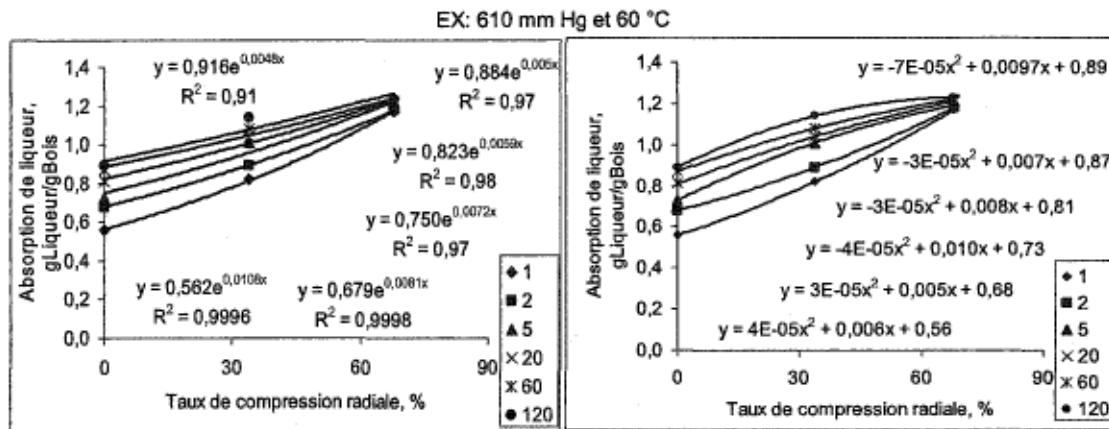


Figure 8-7 Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption de liquide et la compression radiale

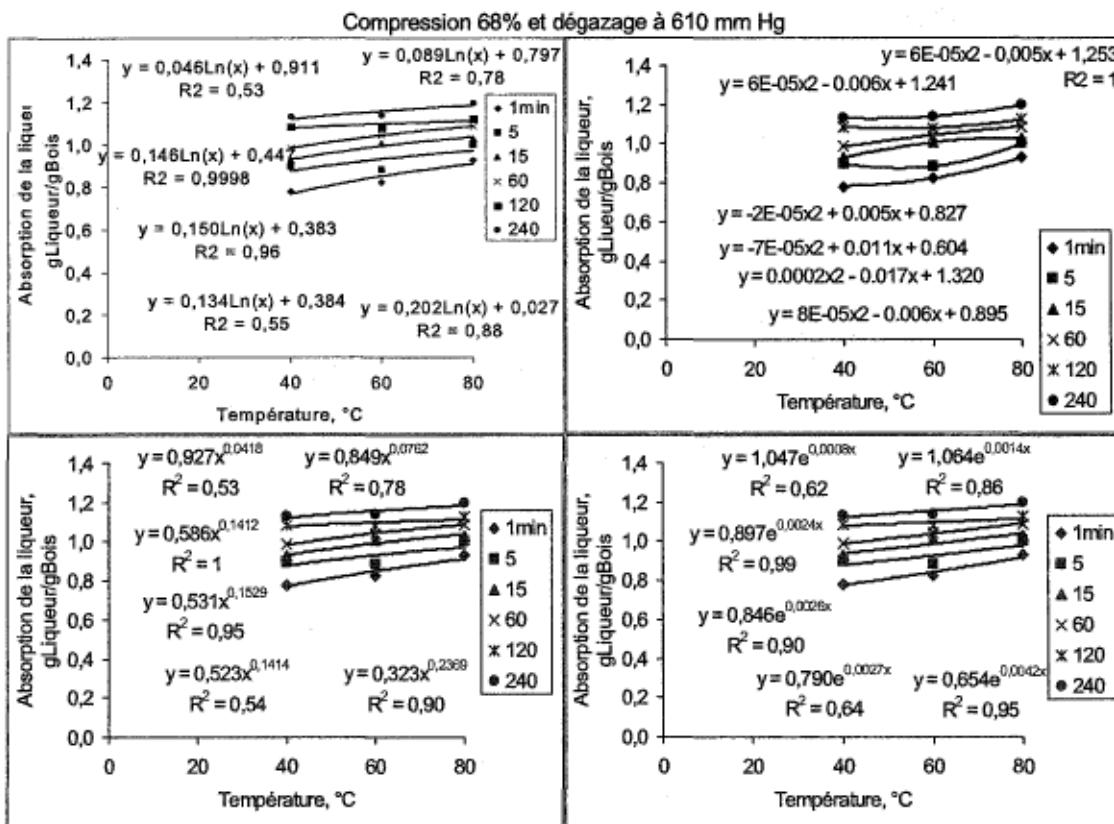


Figure 8-8 Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption de la liqueur et la température pour le cas sous 610 mm Hg

Selon l'équation-1 présentée au chapitre 3, l'absorption de liquide est fonction inverse de la viscosité du liquide. En plus, la température réduit la viscosité de la liqueur de NaOH à 3%. Comme l'équation de viscosité (viscosité = $1/(AT^2 + BT + C)$, où A, B et C sont des constantes et T est la température) [164] existe pour l'eau, on utilise cette équation polynomiale pour la liqueur de NaOH à 3% également. Donc, il est clair que la température peut faciliter la pénétration. D'ailleurs, le réchauffage aide à expulser l'air des blocs de bois. Il a une fonction semblable au dégazage, soit d'augmenter le gradient de pression et favoriser la pénétration de la liqueur. Dans cette partie, deux niveaux de dégazage seulement existent, donc l'effet du dégazage ne pourra être estimé que de façon linéaire.

8.1.2.3 Absorption de NaOH

La figure 8-9 montre les fonctions de la température sur l'absorption d'hydroxyde de sodium dans l'imprégnation avec et sans dégazage, respectivement. Il n'est pas facile de déterminer la forme de la fonction de température. Cependant, selon la théorie de diffusion d'Arrhenius [118], on a choisi une forme exponentielle pour représenter la fonction de la température sur la diffusion des produits chimiques. La figure 8-10 montre les fonctions de la compression radiale sur l'absorption d'hydroxyde de sodium dans l'imprégnation. Pour la raison mentionnée précédemment, il y seulement deux types d'équations non linéaires. On essaye ces deux types d'équations pour trouver la meilleure. L'effet du dégazage sur l'absorption de produits chimiques est uniquement linéaire, car il existe seulement deux niveaux de dégazage.

8.1.3 Ajustement des paramètres du modèle

Dans l'équation de puissance ($Y=aX^b$), le coefficient a et l'exposant b varient avec les variables (compression radiale et gradient de dégazage). Donc, on doit ajuster les paramètres a et b dans les relations discutées précédemment entre l'absorption d'eau et chaque variable. En plus, la teneur en eau est égale à la somme de la teneur en eau originale et de l'absorption d'eau. Puis, on a utilisé le *Solveur* en minimisant la somme de variances pour ajuster les paramètres des modèles.

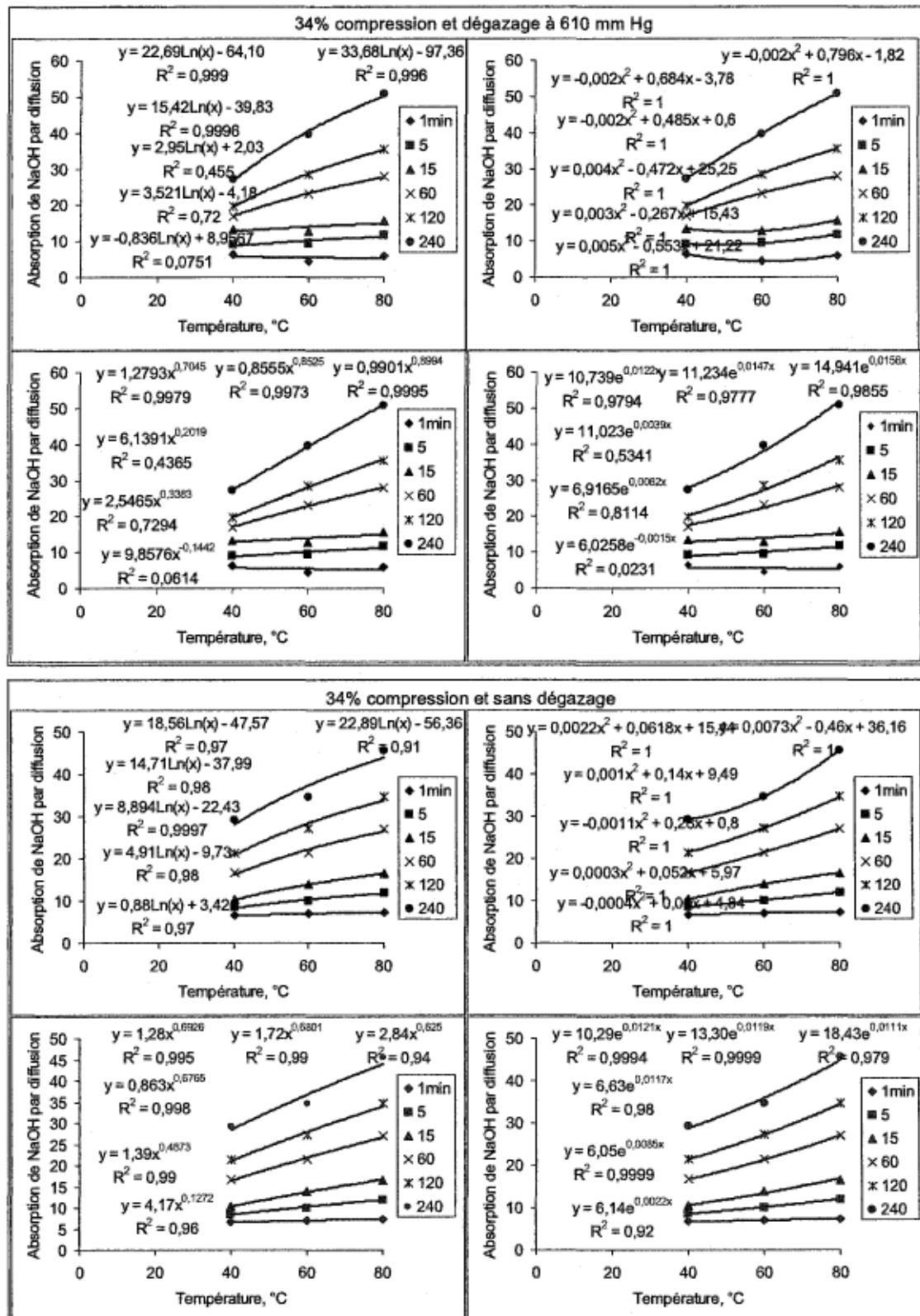


Figure 8-9 Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption de NaOH par diffusion et la température

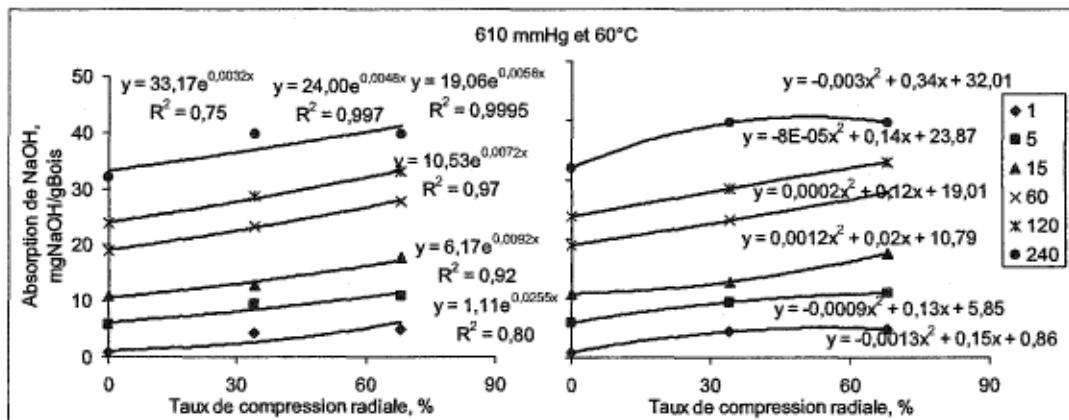


Figure 8-10 Détermination des bonnes fonctions pour l'absorption d'hydroxyde de sodium par diffusion et la compression radiale

8.1.3.1 Teneur en eau

Le tableau 8-1 énumère quelques équations de puissance, les sommes de variances (SV) et les ajustements visuels (AV). L'équation appropriée peut être trouvée en minimisant la somme des variances totales entre les résultats expérimentaux et les données prédites en plus de l'ajustement visuel des courbes qui nous permet de vérifier si une région est mise de côté par le modèle. Bien qu'en général, il est préférable que la somme des variances soit la plus petite possible, ce n'est pas le seul critère pour trouver l'équation appropriée.

Pour qualifier l'équation, l'ajustement visuel est tout aussi important. Par exemple, l'équation 4 au tableau 8-1 montre que la somme des carrés des résidus (SCR) est faible mais l'ajustement visuel (AV) de la courbe n'est pas bon. La combinaison de ces deux normes permet de constater que l'équation 2 est la meilleure parmi 10 équations de puissance du temps d'imprégnation au tableau 8-1.

Tableau 8-1 Évaluation des équations de prédition

	Équations	SCR	AV
1	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,02 \times e^{(0,23+4,81xCom)}) + 0,40xe^{(-5,44-6,75xGp/760)}$ $- 0,0003 \times e^{(-4,10+17,66xComxGp)}$ $\times t^{(0,02x(1+11,33xGp/760-1,70xCom-9,19xComxGp/760-3,65x(Gp/760)^2+0,36xCom^2))}$	0,068	O
2	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,29 \times e^{(-2,50+4,78xCom)}) + 0,29 \times e^{(-4,84+6,40xGp/760)}$ $- 0,00009 \times e^{(-3,78+15,56xComxGp)-0,01}$ $\times t^{(0,02x(1+9,12xGp/760-0,87xCom-8,08xComxGp/760-2,50x(Gp/760)^2-0,30xCom^2))}$	0,067	O
3	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,12 \times e^{(-1,39+4,57xCom)}) + 1,76 \times e^{(-6,95+6,69xGp/760)}$ $+ 0,008 \times \text{LN}(ComxGp))$ $\times t^{(0,007x(1+42,09xGp/760-8,03xCom-36,82xComxGp/760-13,71x(Gp/760)^2+8,23xCom^2))}$	0,080	N
4	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,25 \times e^{(-0,58+3,14xCom)}) + 2,85 \times e^{(-1,73+1,38xGp/760)}$ $- 0,39 \times \text{LN}(ComxGp)-1,94$ $\times t^{(0,007x(1+37,35xGp/760-7,39xCom-32,54xGp/760*Com-12,29x(Gp/760)^2+7,44xCom^2))}$	0,080	N
5	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,24xe^{(-0,62+3,20xCom)}) + 2,60 \times e^{(-1,80+1,48xGp/760)}$ $- 0,37 \times \text{LN}(ComxGp) - 1,79$ $\times t^{(0,008x(1+35,34xGp/760-7,15xCom-30,93xComxGp/760-11,53x(Gp/760)^2+7,23xCom^2))}$	0,080	N
6	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,27 \times e^{(-1,30+3,70xCom)}) + 1,33 \times e^{(-2,53+2,52xGp/760)}$ $- 0,21 \times \text{LN}(ComxGp)-0,85$ $\times t^{(0,06x(1+5,52xGp/760-0,02xCom-4,90xGp/760xCom-1,70x(Gp/760)^2+0,53xCom^2-1,36))}$	0,080	N
7	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,35 \times e^{(-1,37+3,52xCom)}) + 1,24 \times e^{(-2,03+2,12xGp/760)}$ $- 0,23 \times \text{LN}(ComxGp) - 1,02$ $\times t^{(0,15x(1+0,33xGp/760)^2x(1-0,97xCom)^2)}$	0,10	O
8	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,13 \times e^{(-1,68+4,78xCom)}) + 1,05 \times e^{(-4,78+4,87xGp/760)}$ $- 0,02 \times \text{LN}(ComxGp) - 0,10$ $\times t^{(0,17x(1-0,08xGp/760)^2-0,03x(1+1,48xCom)^2)}$	0,098	N
9	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (0,21 \times e^{(-2,06+4,69xCom)}) + 1,41 \times e^{(-2,14+2,06xGp/760)}$ $- 0,01 \times \text{LN}(ComxGp) + 0,09$ $\times t^{(0,47x(1-1,78xGp/760)^2x(1-0,93xCom)^2)+(1-0,87xe(Gp/760xCom))}$	0,079	N
10	$\text{Tee} = \text{Tee}_0 + (2,64 \times e^{(-2,27+2,29xCom)}) - 89,29 \times e^{(-0,01-0,004xGp/760)}$ $+ 0,01 \times e^{(ComxGp)} + 87,75$ $\times t^{(1,27x(1-1,79xGp/760)^2x(1-0,93xCom)^2)}$	0,17	N

Le modèle mathématique retenu de la teneur en eau est le suivant:

$$\begin{aligned}
 Tee = Tee_0 + (0,29 \times e^{(-2,50+4,78 \times Com)}) + 0,29 \times e^{(-4,84+6,40 \times Gp/760)} \\
 - 0,00009 \times e^{(-3,78+15,56 \times Com \times Gp/760)} - 0,01) \\
 \times t^{0,019 \times (1+9,120 \times Gp/760) - 0,87 \times Com - 8,71 \times Com \times Gp/760 - 2,50 \times (Gp/760)^2 - 0,30 \times Com^2}
 \end{aligned}$$

Équation 8-1

où Com = Compression radiale

Gp = Gradient de pression, mm Hg

T = Temps, min

Tee₀ = Teneur en eau originale, (gEau/gBois)₀

De l'équation 8-1, le taux de compression et le gradient de pression ont un fort effet positif sur l'absorption d'eau, car ils montrent une relation exponentielle. D'ailleurs, dû à la pression capillaire qui existe naturellement dans les blocs de bois, l'absorption d'eau est positive, lorsque l'imprégnation des blocs non comprimés se fait à pression atmosphérique. Les conditions optimales du taux de compression et du gradient de pression augmentent l'impact sur l'absorption initiale, réduisant grandement le temps d'imprégnation et produisant une absorption maximale ou presque.

8.1.3.2 Absorption de liqueur chimique (NaOH à 3%)

Le tableau 8-2 énumère quelques équations de puissance, les sommes de variances et les ajustements visuels. Selon la même façon indiquée au 8.4.3.1, on a trouvé que l'équation 1 au tableau 8-2 est une équation plus acceptable pour prédire l'absorption de la liqueur (NaOH à 3%).

Tableau 8-2 Développement du modèle pour l'absorption de la liqueur

No	Équation	SCR	AV
1	$AL = 0,04 \times T^{(0,28 \times (1-0,44 \times Com))} \times (1 - 0,96 \times Com + 6,80 \times Com^2 + 7,44 \times Com \times Gp + 3,36 \times Gp) \times t^{(0,02 \times (1-0,07 \times T + 0,0004 \times T^2 + 12,67 - 2,48 \times Com - 4,97 \times Com^2 - 7,67 \times Gp + 1,37 \times Gp \times Com))}$	0,048	B
2	$AL = 0,06 \times T^{(0,21 \times (1-0,58 \times Com))} \times (1 - 0,92 \times Com + 6,61 \times Com^2 + 7,28 \times Com \times Gp + 3,32 \times Gp) \times t^{(0,29 \times (1-0,006 \times T + 0,00004 \times T^2) \times (1-0,22 \times Com - 0,44 \times Com^2 - 0,69 \times Gp + 0,12 \times Gp \times Com))}$	0,056	B
3	$AL = 0,13 \times (1 + 0,0003 \times T + 0,00003 \times T^2) \times (1 - 1,16 \times Com + 4,49 \times Com^2 + 3,68 \times Com \times Gp + 3,16 \times Gp) \times t^{(0,01 \times (1+0,02 \times T - 0,0004 \times T^2 + 17,21 + 4,42 \times Com - 17,87 \times Com^2 - 12,16 \times Gp + 0,67 \times Gp \times Com))}$	0,062	N
4	$AL = (0,06 \times T^{0,22}) \times (1 - 1,00 \times Com + 4,45 \times Com^2 + 3,92 \times Com \times Gp + 3,33 \times Gp) \times t^{(0,01 \times (1-0,17 \times T + 0,001 \times T^2 + 31,47 + 2,68 \times Com - 22,11 \times Com^2 - 18,14 \times Gp + 1,68 \times Gp \times Com))}$	0,063	B
5	$AL = 0,38 \times (-0,02 \times T + 0,0002 \times T^2 + 1 - 0,08 \times Com + 1,09 \times Com^2 + 1,70 \times Com \times Gp + 1,09 \times Gp) \times t^{(0,01 \times (1+1,22 \times T - 0,01 \times T^2 - 6,89 \times Com - 6,22 \times Com^2 - 19,89 \times Gp - 11,64 \times Gp \times Com))}$	0,175	N
6	$AL = 0,41 \times (-0,02 \times T + 0,0002 \times T^2 + 1 + 0,33 \times Com + 0,61 \times Com^2 + 0,57 \times Com \times Gp + 0,97 \times Gp) \times t^{(0,0007 \times (1+3,67 \times T - 0,03 \times T^2 + 0,06 - 1,65 \times Com - 1,26 \times Com^2 - 5,81 \times Gp - 3,26 \times Gp \times Com))}$	0,788	B
7	$AL = 0,76 \times (-1,04 \times T^{-0,06} + 1 - 0,19 \times Com + 0,82 \times Com^2 + 0,73 \times Com \times Gp + 0,60 \times Gp) \times t^{(0,03 \times (1-0,01 \times T + 0,0001 \times T^2 + 7,78 + 1,26 \times Com - 7,66 \times Com^2 - 5,96 \times Gp + 0,21 \times Gp \times Com))}$	0,099	B
8	$AL = (0,44 / (1 + 0,07 \times T - 0,0007 \times T^2)) \times (1 - 0,19 \times Com + 2,63 \times Com^2 + 4,24 \times Com \times Gp + 2,37 \times Gp) \times t^{(-0,004 \times (1-2,02 \times T + 0,02 \times T^2 + 2,18 + 9,69 \times Com + 9,07 \times Com^2 + 23,74 \times Gp + 21,55 \times Gp \times Com))}$	0,142	N

Donc, le modèle trouvé pour l'absorption de 3%NaOH est le suivant

$$AL = 0,044 \times T^{(0,279 \times (1-0,439 \times Com))} \times (1 - 0,963 \times Com + 6,800 \times Com^2 + 7,738 \times Com \times Gp + 3,360 \times Gp) \times t^{(0,021 \times (1-0,066 \times T + 0,0004 \times T^2 + 12,671 - 2,481 \times Com - 4,967 \times Com^2 - 7,670 \times Gp + 1,370 \times Gp \times Com)}$$

Équation 8-2

où AL = Absorption de la liqueur, gLiqueur/gBois

Com = Compression radiale, %

- Gp = Gradient de pression codé, (0 et 1 pour 0 et 610 mm Hg)
 t = Temps, min
 T = Température, °C

8.1.3.3 Absorption de produits chimiques

Le tableau 8-3 énumère quelques équations de puissance, les sommes de variances et les ajustements visuels pour développer un modèle de prédition pour l'absorption d'hydroxyde de sodium.

D'après le tableau 8-3, on trouve que les équations 3, 4 et 5 au tableau 8-3 sont très proches. Mais c'est l'équation 4 qui est choisie sur la base de la SDV plus petite et le JV plus élevé. Donc, le modèle trouvé pour l'absorption de NaOH est le suivant :

$$\begin{aligned}
 AC_t = AC_{pp} + AC_{dp} &= AC_{pp} + 1,34 \times (273 + T)^{1/2} \times e^{(-4,15/(273+T))} \\
 &\times (1 - 0,86 \times e^{(-0,23Com)} - 0,01 \times Gp + 0,03 \times Com \times Gp) \\
 &\times t^{(0,23 \times (1+0,02T-0,0001T^2) - 0,86Com + 0,43Com^2 + 0,03Gp + 0,01Com \times Gp)}
 \end{aligned}$$

Équation 8-3

où AC_t = Absorption de produits chimiques totale, mgNaOH/gBois

AC_{pp} = Absorption chimique par pénétration, mgNaOH/gBois

AC_{dp} = Absorption chimique par diffusion, mgNaOH/gBois

Com = Compression radiale, %

Gp = Gradient de pression, mm Hg

T = Temps, min

T = Température, °C

L'équation 8-3 illustre que l'absorption totale de produits chimiques vient de deux parties – pénétration de la liqueur et diffusion des produits chimiques. La température a un grand impact sur la diffusion du produit chimique.

Tableau 8-3 Développement du modèle pour l'absorption de NaOH

	Équations	SCR	AV
1	$AC = C_{App} \times 0,89/(1 - 0,28xComxGp) + 0,27x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-20,00/(273+T))x(1+1,94Com - 1,86xCom^2-0,01xGp-0,87xComxGp)} \times t^{(0,18x(1+0,02xT-0,0001xT^2-1,54xCom+1,82xCom^2+0,06xGp+0,64xComxGp)}$	292,1	2/16
2	$AC = C_{App} + 0,77x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-364,65/(273+T))} \times (1 + 0,56xCom - 0,20xCom^2 - 0,32xGp + 0,50xComxGp) \times t^{(0,17x(1+0,03xT-0,0002xT^2-0,45xCom+0,45xCom^2+0,44xGp-0,55xComxGp)}$	320,4	1/17
3	$AC = C_{App} + 0,22x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-156,03/(8,314x(273+T)))} \times (1 + 2,15xCom - 1,78xCom^2 - 0,17xGp + 0,40xComxGp) \times t^{(0,14x(1+0,05xT-0,0002xT^2-2,20xCom+2,28xCom^2+0,23xGp+0,12xComxGp)}$	307,8	1/17
4	$AC = C_{App} + 1,34x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-4,15/(273+T))} \times (1 - 0,86xe^{(-0,23xCom)} - 0,01xGp + 0,03xComxGp) \times t^{(0,23x(1+0,02xT-0,0001xT^2-0,86xCom+0,44xCom^2+0,03xGp+0,01xComxGp)}$	267,2	1/17
5	$AC = C_{App} + 30,43x(273+T)^{-0,414} \times e^{(-1,76/(8,314x(273+T)))} \times (1 + 4,08xCom - 3,06xCom^2 + 0,07xGp - 0,004xComxGp) \times t^{(0,32x(1+0,01xT+0,00002xT^2-1,62xCom+1,45xCom^2-0,05xGp+0,12xComxGp)}$	289,0	2/16
6	$AC = C_{App} + 0,02x(273+T)^{1,19} \times e^{(-3631,21/(8,314x(273+T)))} \times (1 + 0,35xCom - 0,06xCom^2 - 0,01xGp + 0,16xComxGp) \times t^{(0,27x(1+0,002xT)^2x(1+0,07xCom)^2)}$	313,2	2/16
7	$AC = C_{App} + 0,26x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-104,21/(8,314x(273+T)))} \times (1 + 0,35xCom - 0,06xCom^2 - 0,04xGp + 0,14xComxGp) \times t^{(0,24x(1+0,004xT)^2x(1+0,06xCom)^2x(1+0,02xGp))}$	334,4	2/16
8	$AC = C_{App} + 0,25x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-49,19/(8,314x(273+T)))} \times (1 + 0,35xCom - 0,06xCom^2 - 0,01xGp + 0,16xComxGp) \times t^{(0,19x(1+0,004xT)^2x(1+0,13xCom)^2)}$	335,9	2/16
9	$AC = C_{App} + 0,24x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-43,79/(8,314x(273+T)))} \times (1 + 0,18xCom)^2 \times (1 + 0,05xGp) \times t^{(0,19x(1+0,004xT)^2x(1+0,12xCom)^2)}$	354,4	2/16
10	$AC = C_{App} + 0,25x(273+T)^{(1/2)} \times e^{(-89,67/(8,314x(273+T)))} \times (1+0,18xCom)^2 \times (1 + 0,003xGp) \times t^{(0,19x(1+0,004xT)^2x(1+0,12xCom)^2x(0,02xGp))}$	352,6	2/16

8.1.4 Simulation et évaluation des modèles

8.1.4.1 Simulation

Les figures 8-11, 8-12, et 8-13 montrent les données expérimentales et les courbes de simulation pour la teneur en eau, l'absorption de liquide chimique et l'absorption de NaOH dans les blocs de pin gris, respectivement. De ces figures, on peut dire que les courbes de simulation ont bien suivi les traces des données expérimentales. Une comparaison des résultats de la simulation du modèle mathématique (équation 8-1), avec les données expérimentales pour les copeaux industriels de pin gris, indique que le modèle est approprié pour prédire la teneur en eau dans les différents gradients de dégazage et les différents taux de la compression radiale.

8.1.4.2 Évaluation

Le graphique des valeurs prédites contre les données expérimentales et la distribution des résidus sont deux méthodes d'évaluation des modèles. Un graphique entre les valeurs prédites et expérimentales est montré à la figure 8-14a. De la figure 8-14a, on voit qu'une équation linéaire ($y=0,996x + 0,004$) est suffisante pour prédire correctement la réponse, avec un coefficient de régression élevé ($R^2= 0,997$). La distribution des erreurs résiduelles est généralement dispersée (figure 8-14b). Donc, l'équation 8-1 peut bien représenter le modèle mathématique pour faire une prédiction de la teneur en eau. Par la même méthode d'analyse, les figures 8-15 et 8-16 illustrent que les équations 8-2 et 8-3 peuvent être utilisées pour prédire l'absorption de la liqueur de NaOH à 3% et l'absorption d'hydroxyde de sodium.

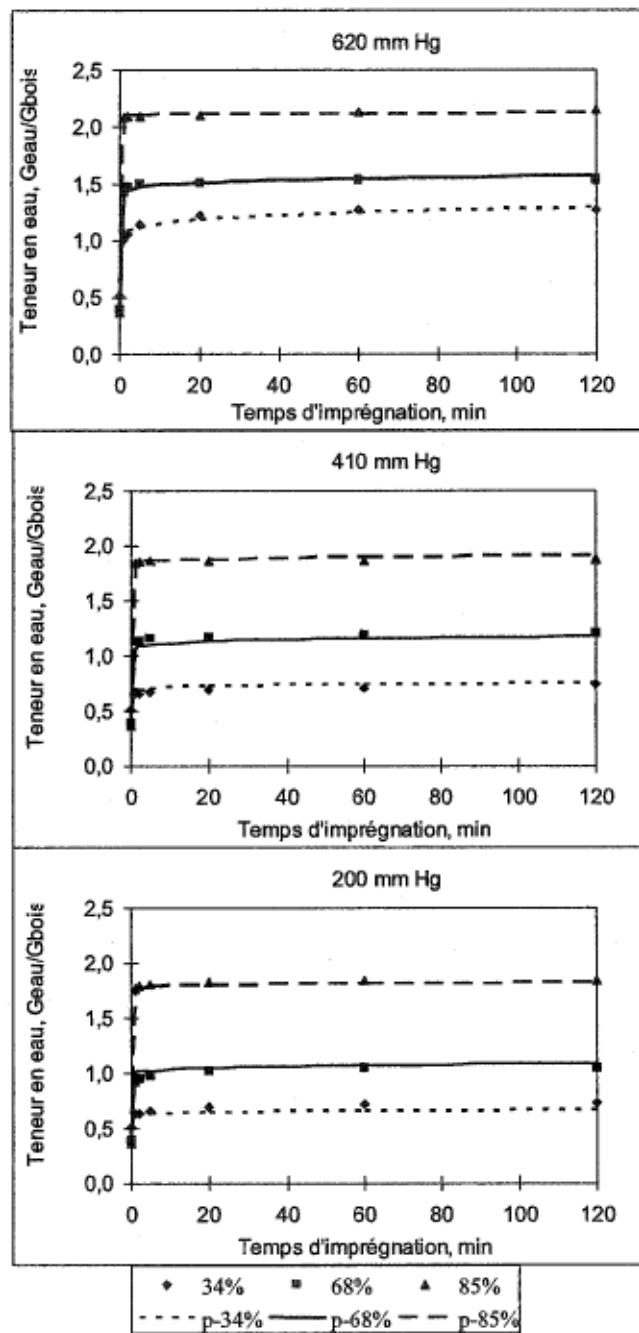


Figure 8-11 Simulation de l'absorption d'eau par le modèle développé présenté dans l'équation 8-1

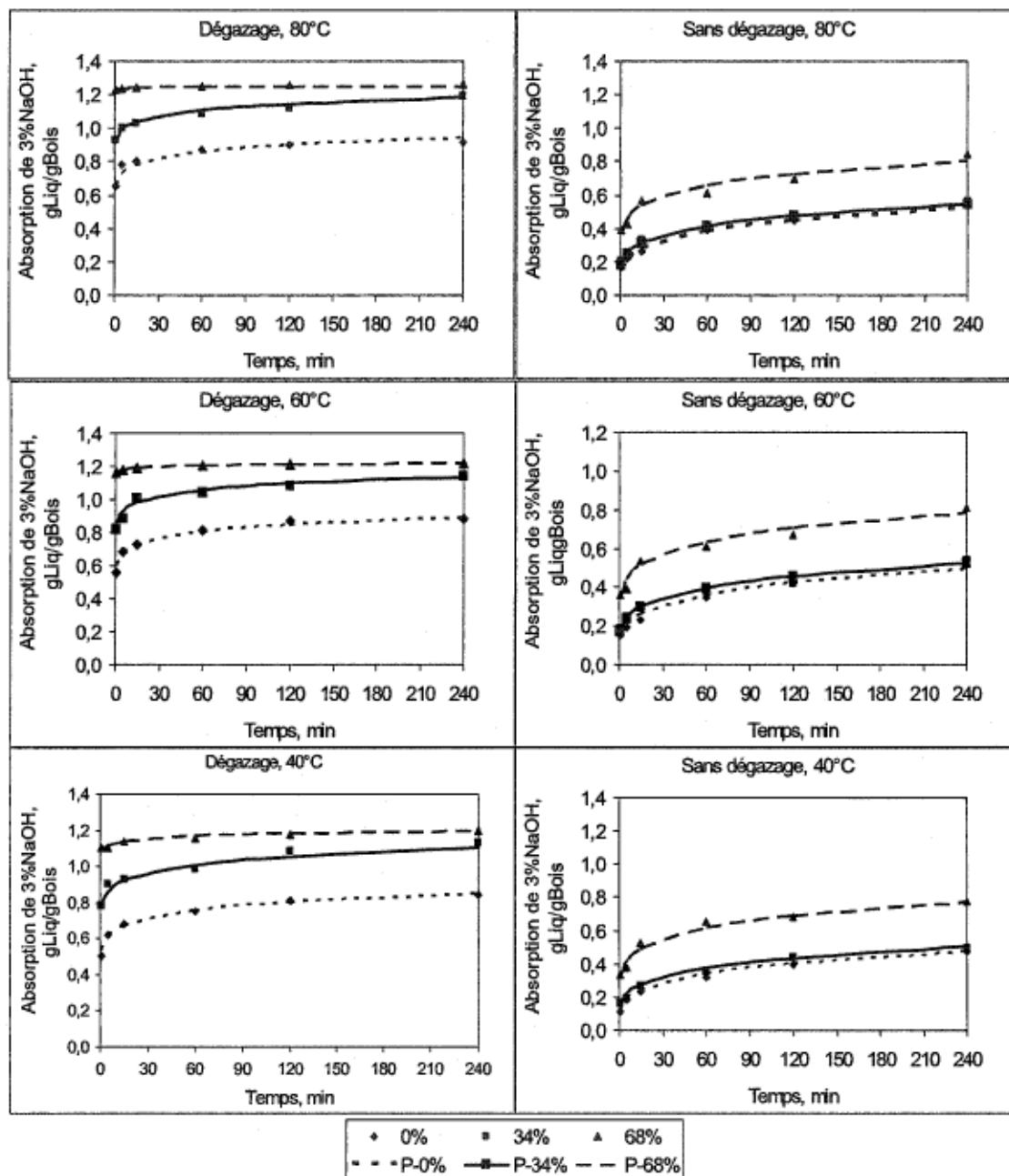


Figure 8-12 Simulation de l'absorption de liqueur chimique -NaOH à 3% par le modèle développé présenté dans l'équation 8-2

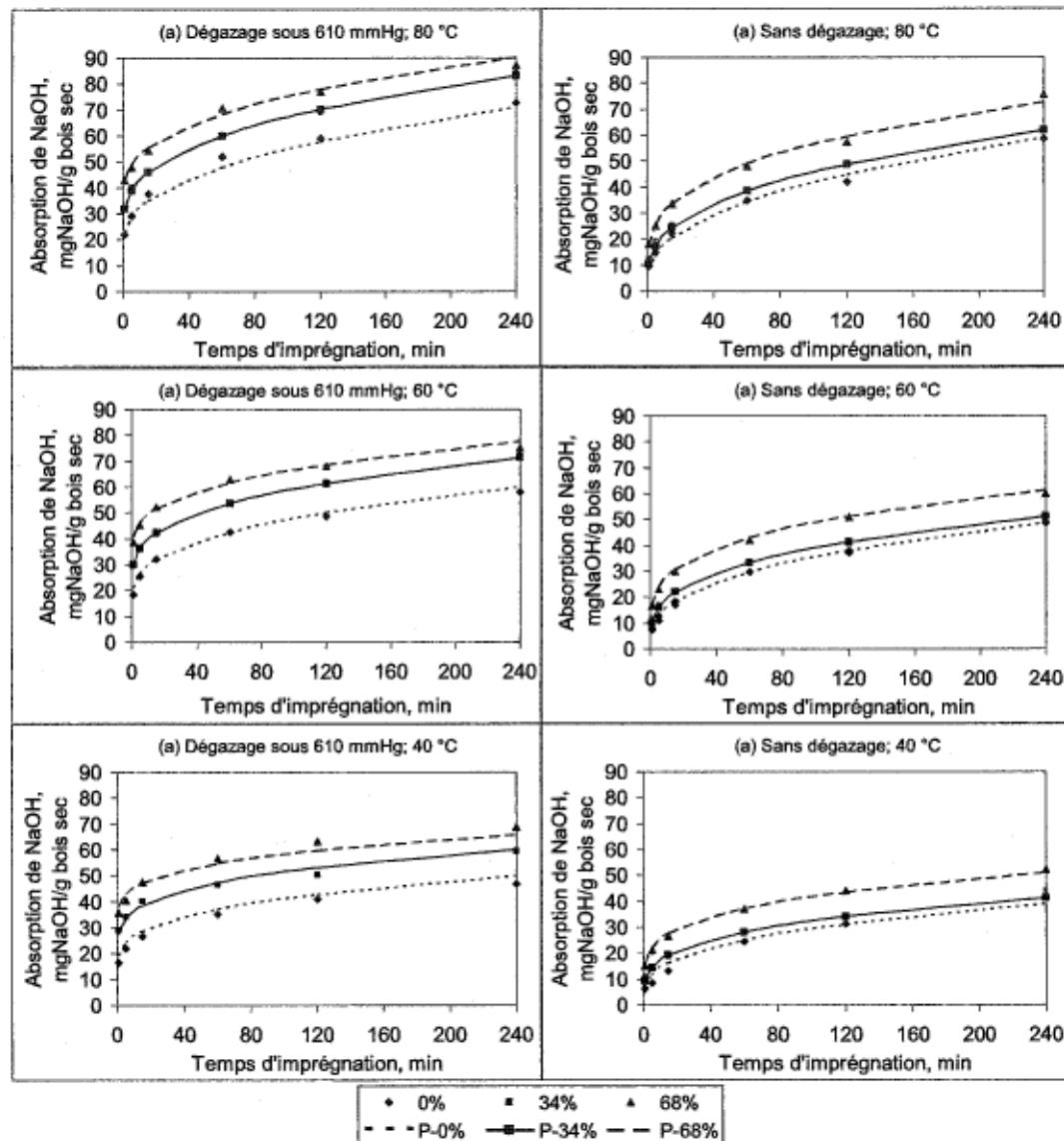


Figure 8-13 Simulation de l'absorption de NaOH par le modèle développé présenté dans l'équation 8-3

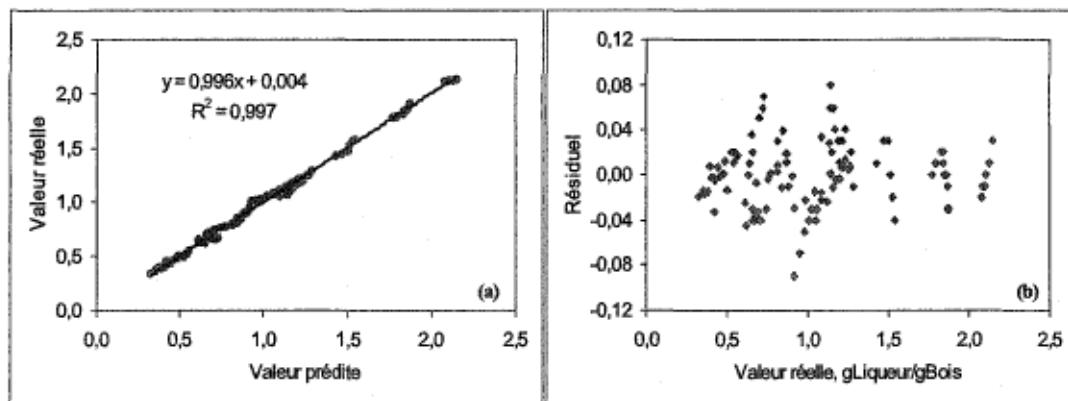


Figure 8-14 (a) Graphique entre les valeurs prédictes et expérimentales et (b) distribution des erreurs résiduelles pour l'absorption d'eau

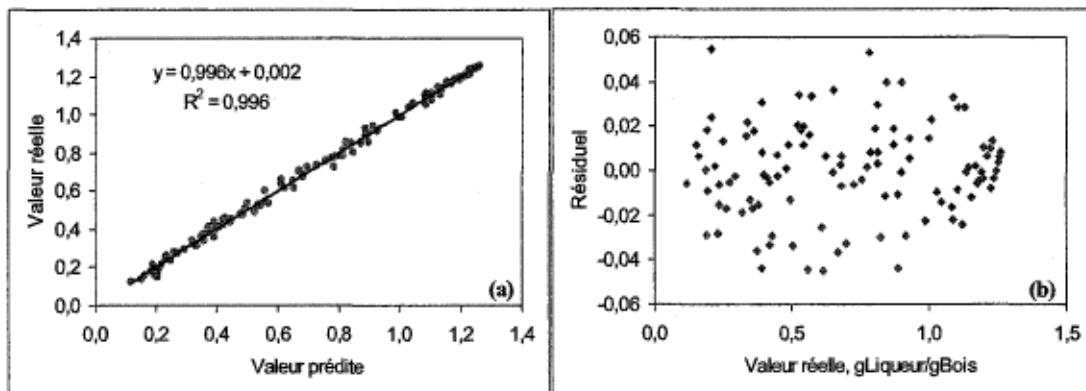


Figure 8-15 (a) Graphique entre les valeurs prédictes et expérimentales et (b) distribution des erreurs résiduelles pour l'absorption de liquide de NaOH à 3%

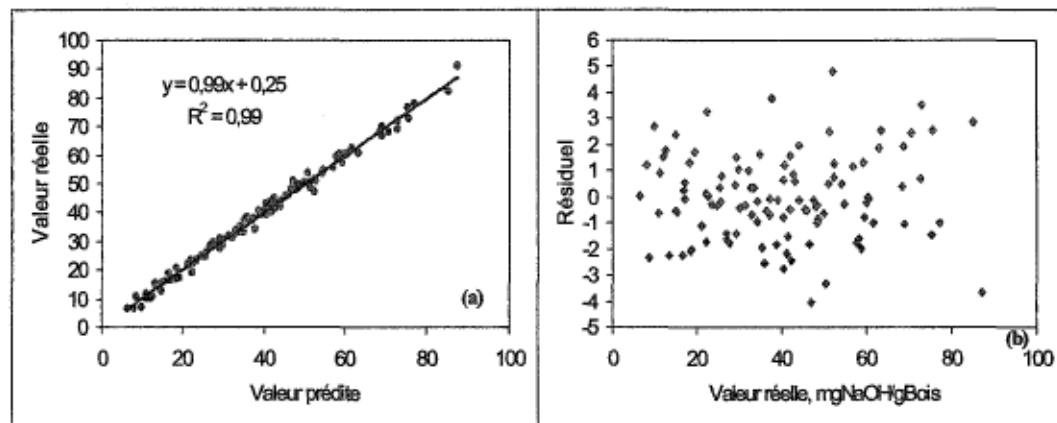


Figure 8-16 (a) Relation entre les valeurs prédictes et expérimentales et (b) distribution des erreurs résiduelles pour l'absorption de NaOH

8.2 Modèle d'absorption du NaOH basé sur la dimension des blocs

L'approche traditionnelle à l'expérimentation consistait à changer seulement un facteur à la fois. Cette approche ne fournit pas les données sur les interactions entre les facteurs, une occurrence probable avec des processus chimiques. Les méthodes de surface de réponse peuvent découvrir les interactions critiques et ramener le nombre exigé d'expériences au minimum pour déterminer les effets des paramètres importants du processus. De plus, en produisant une surface de réponse, l'endroit optimum d'un processus peut être identifié. Plus les facteurs couvrent un écart étroit, plus la surface se rapprochera d'un modèle polynomial simple. Dans la plupart des cas, une équation quadratique suffira.

La conception expérimentale appliquée dans ce projet est un plan d'expérience personnalisé, qui inclut quatre variables à différents niveaux (5, 5, 2, 3). Donc il existe quatre effets principaux, six interactions de deux facteurs et trois effets quadratiques, donc 13 termes. La matrice expérimentale et les résultats expérimentaux de cette étude sont montrés au tableau à l'annexe V. Les niveaux bas et hauts des facteurs X1, de X2 et de X3 (variables codées pour E, L, et C, respectivement) sont dénotés par "- 1" et "+1". La position des points factoriels et les points centraux sont représentés par $(\pm 1, \pm 1, \pm 1)$ et $(0, 0, 0)$, respectivement. Les points axiaux sont placés à $(\pm 1,41, 0, 0)$, $(0, \pm 1,41, 0)$, et $(0, 0, \pm 1,41)$. Cette distance axiale correspond à un plan d'expérience isovariant par rotation. Pour établir les corrélations, les résultats expérimentaux pour toutes les équations quadratiques de réponses ont été employés. L'équation inclut des limites de premier ordre pour modéliser l'effet principal, aussi bien que les limites de second ordre pour des interactions et des effets quadratiques purs :

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^3 \beta_i X_i + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 \beta_{ij} X_i X_j \quad \text{Équation 8-4}$$

8.2.1 Modèle de régression

L'analyse de variance (ANOVA) a été employée pour identifier les effets non significatifs, qui ont été exclus du modèle de régression, et pour vérifier l'ajustement du modèle. Le progiciel

JMP IN a été employé pour effectuer l'ANOVA et trouver le modèle de régression. Des courbes de contour (représentation bidimensionnelle de la surface de réponse) du modèle ont été utilisées pour localiser les conditions optimales du processus. Des détails au sujet des méthodes de surface de réponse peuvent être trouvés dans la littérature [165].

Le tableau 8-4 montre les coefficients estimés obtenus à aide du logiciel JMP IN 4 appliquée aux résultats expérimentaux présentés à l'annexe V. Les effets ayant un niveau de signification inférieur à 95% ont été négligés pour l'établissement du modèle de régression quadratique final. Des résultats des coefficients estimés au tableau 8-4, on dit que tous les termes sont significatifs au niveau de signification supérieur à 95%. Le modèle pour l'absorption chimique (AC) dans le cas de la variable dimension des blocs est comme suit:

$$\begin{aligned}
 Y(AC) = & 22,79 - 3,67X_e - 3,51X_l + 2,88X_c + 15,38X_t + 0,8471X_e(X_c + 0,286) \\
 & + 0,25X_l(X_c + 0,29) + X_l(X_t - 1,61) + X_e(X_t - 1,93) + 1,04X_t(X_c + 0,29) \\
 & + 1,41X_e^2 + 1,16X_l^2 + 3,44(X_c + 0,29)^2
 \end{aligned}$$

Équation 8-5

où X_e , X_l , X_t et X_{com} sont les variables codées pour l'épaisseur des blocs, la longueur des blocs, le temps et le taux de compression, respectivement.

Tableau 8-4 Coefficients estimés obtenus à partir des résultats à l'annexe V

Terme	Coefficient Estimé	Erreur Std	Ratio t	Prob> t
Intercept	22,79	0,64	35,66	<,0001
Xe	-3,67	0,21	-17,75	<,0001
Xl	-3,51	0,21	-16,97	<,0001
Xcom	2,88	0,31	9,29	<,0001
Xe*Xe	1,41	0,34	4,11	<,0001
Xl*Xl	1,16	0,34	3,39	0,0010
(Xcom+0,28571)*Xe	0,85	0,30	2,87	0,0049
(Xcom+0,28571)*(Xcom+0,28571)	3,44	0,42	8,16	<,0001
Xt	15,38	0,19	78,91	<,0001
Xl*Xt	-1,61	0,21	-7,79	<,0001
Xe*Xt	-1,93	0,21	-9,33	<,0001
Xt*(Xcom+0,28571)	1,04	0,28	3,72	0,0003

8.2.2 Évaluation

Les valeurs observées contre les valeurs prédites et les erreurs résiduelles contre les valeurs prédites pour le modèle choisi peuvent être vues sur les figures 8-17 a et b, respectivement. On peut observer que la majorité des points sont proches de la ligne à 45° , mis à part quelques points un peu éloignés (figure 8-17a). La distribution des erreurs résiduelles est généralement dispersée (figure 8-17b). Donc, on constate une bonne concordance entre les deux valeurs, qui indique la convenance du modèle développé pour localiser les conditions optimales de processus. On peut voir que la somme de carrés associée au modèle pour Y explique pratiquement toute la variabilité.

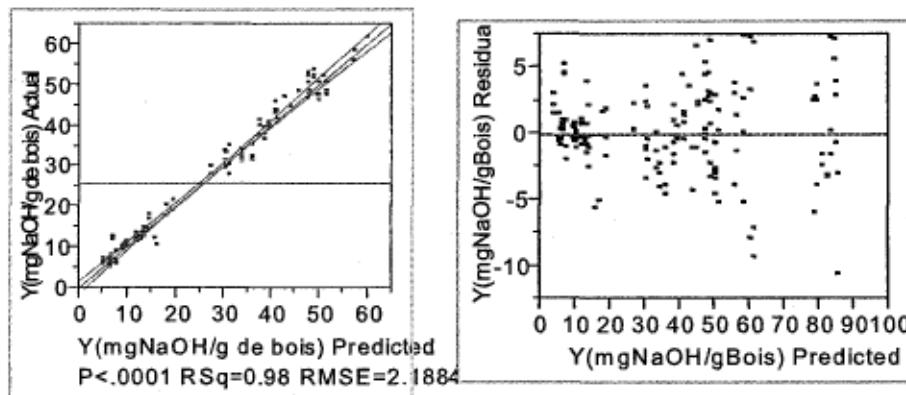


Figure 8-17 (a) Valeurs mesurées en fonction des valeurs prédites et (b) Erreurs résiduelles en fonction des valeurs prédites pour le modèle d'absorption d'hydroxyde de sodium

8.3 Conclusion

- 1) La méthode *Solveur* du logiciel Microsoft Excel est un outil simple pour ajuster les paramètres d'équations non linéaires avec une variable. Elle est aussi un bon outil pour trouver une équation non linéaire lorsque plusieurs variables sont présentes, par la somme de variances, lorsqu'on a une certaine connaissance des relations entre les réponses et les variables indépendantes. Mais la somme de variance n'est pas la seule norme pour déterminer l'équation appropriée. Il est préférable de vérifier aussi l'ajustement visuel pour s'assurer que la courbe s'ajuste correctement sur toute la plage de données.

- 2) Les équations trouvées peuvent être utilisées pour estimer quantitativement l'absorption d'eau, l'absorption de liqueur et l'absorption d'hydroxyde de sodium et optimiser les conditions d'imprégnation du bois de pin gris. Les équations prédictives quantitativement montrent que la compression radiale et le gradient de pression ont un grand impact sur l'absorption des liquides et la température sur l'absorption chimique diffusée. Elles sont très significatives comme références pratiques pour les papetières afin d'optimiser le procédé d'imprégnation chimique avant raffinage.
- 3) En général, les réponses peuvent être expliquées par la pénétration et la diffusion. Dans tous les cas, la pénétration et la diffusion sont fonction du temps d'imprégnation à une puissance du temps. Le coefficient et l'indice de puissance du temps varient avec d'autres variables comme: compression radiale, pression, température. Le coefficient de la puissance du temps augmente avec les autres variables; mais l'indice de puissance du temps diminue avec les autres variables.
- 4) Le progiciel *JMP IN* est plus facile à utiliser pour trouver un modèle polynomial représentant une réponse de surface sans connaître des relations ou informations entre la réponse et les variables.

Chapitre 9 - CONCLUSIONS GÉNÉRALES

La compression radiale change les caractéristiques physiques des spécimens du bois de pin gris, telles que l'humidité, la densité, la déformation, le volume de vide et la création des fissures (micro et macro). Toutes ces variables réponset varient avec le taux de compression. Dans le but d'améliorer efficacement la pénétrabilité et l'absorption de produits chimiques, un taux de compression d'environ 50% est nécessaire.

- Pendant une compression radiale, l'humidité des blocs diminue en fonction du taux de compression radiale à la puissance négative, donc la teneur en eau diminue progressivement.

- La densité des blocs est fonction du taux de compression de façon polynomiale. La densité des blocs comprimés après relâchement augmente légèrement lorsque le taux de compression est faible mais elle diminue graduellement avec l'augmentation du taux de compression.

- Une densification du bloc de bois après un cycle de compression et de décompression se produit lorsque le taux de compression radiale est inférieur à 34%. Une compression radiale de plus de 50% peut augmenter clairement le volume de vide par la création de macro-fissures (1-5 μm).

- La compression radiale produit une déstructuration localisée selon la fragilité d'organisation morphologique microscopique, la force impliquée et certaines conditions d'essai. Par exemple, on observe des macro-fissures le long des rayons et des canaux résinifères et dans la lamelle mitoyenne composée, particulièrement celle de la région près de rayons et canaux résinifères. On note également des fissures aux coins des fibres et dans la région près des ponctuations aréolées.

- Étant donné que la force de compression est appliquée dans la direction radiale, les parois cellulaires radiales ont subi beaucoup de dommages, tandis que les parois tangentielles sont moins affectées. En fait, la séparation des fibres dans la direction tangentielle se produit

seulement sous une forte compression comme 85%. Le taux de compression radiale augmente la séparation partielle des fibres voisines. L'augmentation du taux de compression amplifie la taille et le nombre de macro-fissures.

-L'absorption d'eau à saturation est influencée surtout par la création de volume de fissures et un peu par la déformation permanente des fibres. Cependant l'effet de la diminution du volume de lumens par une compression peut être réduit par un trempage dans l'eau des blocs comprimés.

L'état ou précisément l'historique du bois influence grandement la pénétrabilité par l'eau. Le séchage du spécimen de pin gris peut diminuer la pénétrabilité du bois par la formation d'aspiration des membranes des paires de ponctuations aréolées.

-Une faible compression favorise la formation d'aspiration de ponctuations pendant le séchage à la température ambiante à cause de l'évaporation d'eau libre du spécimen. La haute température du séchage facilite grandement la formation de ponctuations aspirées dans les spécimens comprimés à 34%.

La compression et le gradient de pression sont deux variables extrêmement importantes sur l'absorption de liquide/liqueur par le mécanisme de pénétration. Cependant, une température élevée aide à expulser l'air occlus dans la matrice de bois et augmente la vitesse de pénétration.

-La compression radiale est une variable très importante et intéressante pour améliorer la pénétration de la liqueur. Une compression radiale crée non seulement des micro ou macro-fissures; mais elle modifie également les réseaux des passages. Ceci facilite la pénétration du liquide vers les régions centrales des spécimens tout en réalisant un degré plus élevé de pénétration. Une basse déformation peut seulement favoriser la pénétration initiale lorsque les blocs sont traités sous vide. Une augmentation du taux de déformation favorise non seulement

la pénétration initiale mais elle augmente la quantité maximale de pénétration. Par conséquent, l'absorption de liquide/liqueur augmente généralement avec la compression radiale.

-Le dégazage des spécimens peut largement diminuer le temps d'imprégnation; l'absorption atteint un plateau dans un court temps, seulement une minute. Un gradient élevé est plus important pour les spécimens comprimés à faible compression que pour ceux comprimés à forte déformation. Il favorise une absorption d'eau dans les macro et micro-fissures qui se trouvent plus profondément situées au centre des spécimens. Il existe une grande interaction entre la compression et le dégazage sur l'absorption de liquide/liqueur.

-Le réchauffage des copeaux et la température d'imprégnation sont efficaces pour faciliter la pénétration des liquides. Le temps n'est pas un facteur important sur la pénétration de la liqueur quand l'imprégnation est effectuée sous une pression de 150 mm Hg, mais il est significatif lorsque aucun dégazage n'est effectué. La liqueur chimique (NaOH à 3%) a pour effet de diminuer la solidification irréversible du spécimen plus efficacement que l'eau.

-La compression radiale et le gradient de pression influencent grandement l'absorption d'hydroxyde de sodium pénétré et un peu celle diffusée. Au contraire, la température a un grand impact sur l'absorption d'hydroxyde de sodium diffusée.

-La compression radiale et le gradient de pression peuvent diminuer grandement le temps d'imprégnation pour obtenir une valeur fixe d'absorption d'hydroxyde de sodium. Mais il est difficile d'obtenir une absorption maximale des produits chimiques des copeaux comprimés avant le raffinage à cause du long temps de diffusion.

-La température est une variable importante qui influence l'absorption de produits chimiques principalement par la diffusion et légèrement par la pénétration. Le mécanisme de diffusion des produits chimiques se fait beaucoup plus lentement que la pénétration. L'absorption des produits chimiques a augmenté avec le temps d'imprégnation pendant les quatre heures, cependant la pénétration initiale se termine rapidement en condition optimale.

-La dimension des blocs ou des copeaux est un facteur important sur l'absorption de NaOH des blocs comprimés. L'épaisseur et la longueur ont un effet négatif sur l'absorption : l'épaisseur est plus critique que la longueur.

-Le temps est un facteur très significatif sur l'absorption de NaOH dans le cas d'un procédé sans dégazage où la pénétration est moindre.

-Dans la compression, à l'aide d'une presse à vis avec un rapport de compression de 2 :1, la dimension des blocs n'est pas très critique car les blocs sont plus ou moins désintégrés par diverses forces mécaniques. Par conséquent, l'influence de l'épaisseur et de la longueur des blocs devient minimale tout en ayant des effets positifs. On observe que la compression par une presse à vis est plus significative que la compression radiale statique sur l'absorption du NaOH, car il n'y a qu'une seule force de compression dans cette dernière.

La compression radiale a aussi modifié l'uniformité de distribution d'hydroxyde de sodium qui s'accroît avec l'augmentation du taux de compression.

-La compression radiale augmente l'uniformité de distribution d'hydroxyde de sodium et diminue beaucoup le temps pour obtenir la même quantité de NaOH absorbé.

-La pénétration de la liqueur s'effectue principalement dans la direction longitudinale par les passages des lumens. La compression radiale, qui a créé des fissures de diverses tailles dans le bois, améliore la distribution des produits chimiques dans les directions radiale et longitudinale.

-La pénétration contrôle l'uniformité de distribution des produits chimiques dans un spécimen entier au point de vue de macrostructure par les passages comme les lumens, les ponctuations aréolées et les macro et micro-fissures. Cependant, la diffusion est requise pour réaliser une distribution uniforme des produits chimiques dans les parois cellulaires du point vue morphologie microscopique. Le temps est un facteur important pour la diffusion des produits

chimiques. Mais la diffusion est très lente dans la matrice du bois comparativement à la pénétration de la liqueur dans la direction longitudinale.

La méthode dans laquelle la liqueur de NaOH à 3% est introduite, dans le récipient qui contient les blocs comprimés et dégazés, est semblable à celle dans laquelle les blocs sont comprimés directement dans la liqueur chimique.

La méthode *Solveur* dans le logiciel Microsoft Excel est un outil simple pour ajuster les paramètres d'équations non linéaires avec une variable. Elle est aussi un bon outil pour trouver une équation non linéaire lorsque plus d'une variable est présente et lorsqu'on a une certaine connaissance des relations entre les réponses et les variables indépendantes. Mais la somme de variance n'est pas la seule norme pour déterminer l'équation appropriée. Il est préférable de vérifier aussi l'ajustement visuel pour s'assurer que la courbe s'ajuste correctement sur toute la plage des données. Les modèles mathématiques peuvent être utilisés pour estimer quantitativement les réponses telles que la teneur en eau, l'absorption de la liqueur de NaOH à 3% et l'absorption d'hydroxyde de sodium.

BIBLIOGRAPHIE

1. Law, K. N., Valade, J. L., "Status of the Utilization of Jack Pine (*Pinus banksiana*) in the pulp and paper industry", *Can. J. For. Res.* 24 (10): 2078-2084 (1994).
2. Law, K. N., Valade, J. L., Yang, K. C., "Fiber Development in Thermo-mechanical Pulping: Comparison Between Black Spruce and Jack Pine", *J. of Pulp and Paper Science* 24 (2): 73-76 (1998). 83rd Annual Meeting CPPA Proceedings, Montreal, Canada, pp. B113-B127 (1997).
3. Jossart, D., Barbe, M. C., Lapoint, M., Law, K. N., "Properties of Mechanical and Chemi-Mechanical Jack Pine Pulps: Part I – Thermochemical Pulps", *Pulp and Paper Can.* 89 (4): T115-T122 (1988).
4. Laliberté, D., Shallhorn, P. M., Karnis, A., "Comparison of TMP and CTMP properties from Spruce and Pine Saw-mill Chips", *Pulp and Paper Can.* 88 (3): 94-100 (1987).
5. Tyrväinen, J., Law, K. N., Valade, J. L., "Alkaline-Peroxide Inter-Stage Treated Mechanical Pulp from Jack Pine (*Pinus Banksiana*), Part I. Introduction and Pulp Physical Properties", *Pulp and Paper Can.* 98 (6): T191-T196 (1997).
6. Tyrväinen, J., Law, K. N., Valade, J. L., "Alkaline-peroxide Inter-Stage Treated Mechanical Pulp from Jack Pine (*Pinus Banksiana*), Part II. Pulp Optical properties, Color Reversion, Extractives Content and Process Implications", *Pulp and Paper Can.* 98 (7): T223-T227 (1997).
7. Smook, G. A., "Handbook for pulp and paper technologists", 3rd Ed, Angus Wilde Publications Inc. Vancouver, Canada, pp 1-20 (2002).
8. Rydholm, S. A., "Pulping Processes", John Wiley & Sons, New York, 1-367(1965).
9. Siau, J. F., "Transport Processes in Wood", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Germany, pp. 1-51,97-98, 106-107 (1984).
10. Hon, D. N. -S., Shiraishi, N., "Wood and Cellulosic Chemistry", 2^{er} edition, Marcel Dekker, Inc., New York, USA, pp. 1-80, 213-237, 584-590 (2001).
11. Sjöström, E. "Wood chemistry: fundamentals and applications", Academic Press, New York, U.S.A., pp. 1-20 (1981).
12. Davies, G. W., "Electron Microscopy and Cell Wall Porosity", *Australian Pulp and Paper Industry Technical Association* 21: 17-130 (1968).

-
13. Panshin, A. J., De Zeeuw, C., (ED), "Textbook of Wood Technology", 3rd ed., Vol.I, McGraw-Hill, New York, USA, pp. 1-98 (1970).
 14. Puu-19.150, "Chemistry of Cellulose Making- Module II - Basics of wood chemistry", uniform resource Lacotor http://www.hut.fi/Units/Forestpc/studying/courses/150/150_prerequisites/module2.html (2004).
 15. Parameswaran, N., Liese, W., "Ultrastructural Localization of Wall Components in Wood Cells", Holz. Roh. -Werkst. 40 (4): 145-155 (1982).
 16. Isenberg, I. H., "Pulpwood of the United States and Canada", Vol. I -Conifers, Appleton, Wisconsin, The Institute of Paper Chemistry, USA, pp.12-18, 100-107 (1980).
 17. Lee, J., Balatinecz, J. J., Imada, S. E., Whining, P., "Optical Properties of Eight Eastern Canadian Wood Species. (2) Effect of Mechanical Pulping on Optical Properties", 75th Annual Meeting CPPA Proceedings, Montréal, Canada, pp. A63-A70 (1989).
 18. Panshin, A. J., de Zeeuw, C., "Textbook of Wood Technology", Vol. I, 4th ed., McGraw-Hill, New York, pp.722 (1980).
 19. Mullins, E. J., McKnight, T. S., "Le Bois du Canada-Leur Propriétés et Leur Usages", 1ère éd., Ministre des Approvisionnements et Services Canada, pp.135 (1981).
 20. Tay, C. H., Manchester, D. F., "Jack pine as Pulpwood for Newsprint Manufacture. (1) Significance of Fiber Morphology and Extractives", Can. Wood Sci. Symp., Niagara Falls, Canada, pp.109-114 (1982).
 21. Berzins, V., "Chemical Composition of Wood", Pulp and paper Research Institute of Canada, Point-Claire, Qué. Res. Note 61 (1966).
 22. Sinclair, G. D., Dymond, D. K., "Distribution and Composition of Extractives in Jack Pine Trees", Can. J. Forest Res. 3 (4): 516-521 (1973).
 23. Sinclair, G. D., Dymond, D.K., "The Effect of Alkaline Cooking Agents on Jack Pine Extractives", Pulp and Paper Magazine of Canada 72 (7): 78-81 (1971).
 24. Macdonald, R. G., Franklin, J. N. "Pulp and Paper Manufacture", Vol. 1, 2nd McGraw-Hill Book Co. Inc. New York, pp.6-8, 64-68 (1970).
 25. Lanouette, R., Thibault, J., Valade, J.L., " High Yield Pulping of Jack Pine", Pulping Conference, TAPPI Proceedings, San Francisco, CA, USA, pp. 329-334 (1997).

-
- 26. Brown, H. P., Panshin, A. J., Forsaith, C. C., "Textbook of wood technology", Vol. II, McGraw-Hill Book, New York, U.S.A. pp. 54-55, 73-74 (1952).
 - 27. Fengel, D., Wolfsgruber, H., "Studies in Impregnated Pine Sapwoods by Electro-Optical Methods", Holz Roh-Werkstoff 29: 67-76 (1971).
 - 28. Wallström, L., Lindberg, K. A. H., "Measurement of Cell Wall Penetration in Wood of Water-Based Chemicals Using SEM/EDS and STEM/EDS Technique", Wood Science Technology 33 (2): 111-122 (1997).
 - 29. Park, J., Hayashi, K., Wakabayashi, N., "Behaviour of Pit Membrane in Softwood under the Centrifugal Field", Zairyo/J. of Society of materials Science 48 (3): 213-217 (1999).
 - 30. Bramhall, G, Wilson, J. W., "Axial Gas Permeability of Douglas-fir Microsections Dried by Various Techniques", Wood Sci. 3 (4): 223-230 (1971).
 - 31. Herrington, T. M., Midmore, B. R., "Adsorption of Ions at the Cellulose / Aqueous Electrolyte Interface", Part 2. Determination of the Surface Area of Cellulose Fibres", JCS Faraday I 80 (6): 1539-1553 (1984).
 - 32. Stationwala, M. I., Karnis, A., "Pulp Grinding – a New Method for Producing Mechanical Pulp", Tappi J. 73 (12): 187-195 (1990).
 - 33. Corson, S. R., "Aspects of Mechanical Pulp Fiber Separation and Development in a Disc Refiner", Paperi ja Puu 71 (7): 801, 803-810, 813-814 (1989).
 - 34. Koran, Z., "Energy Consumption in Mechanical Fiber Separation as a Function of Temperature", CPPA Trans. Tech. Sect. 7 (2): TR 40-44 (1981).
 - 35. Atalla, R. H., Wahren, D., "On Energy Requirements in Refining", Tappi J. 63 (6): 121-122 (1980).
 - 36. Höglund, H., Sohlin, U., Tistad, G., "Physical Properties of Wood in Relation to Chip Refining", Tappi J. 59 (6): 144-147 (1976).
 - 37. Atack, D., Heitner, C., "Dynamic Mechanical Properties of Sulfonated Eastern Black Spruce", CPPA Trans. Tech. Sect. 5 (4): TR 99-108 (1979).
 - 38. Vikström, B., Hammar, L. A., "Defibration in Chemimechanical Pulping: Viscoelastic Properties of Kraft-, Sulfide/Sulfite- and Bisulfite- Cooked Sprucewood", Sven. Papperstidn. 82 (6): 171-177 (1979).

-
- 39. Sundholm, J., "Mechanical Pulping", Vol.5 of "Papermaking Science and Technology", 1st ed., Fapet Oy, Jyväskylä, Helsinki, Finland, pp. 223-249 (1999).
 - 40. Frazier, W. C., Williams, G. J., "Reduction of Specific Energy in Mechanical Pulping by Axial Precompression of Wood", Pulp and Paper Canada 83 (6): 87-92 (1982).
 - 41. Franzen, R. G., "General and Selective Upgrading of Mechanical Pulps", International Mechanical Pulping Conference, Stockholm, Sweden, pp.19-23 (1985).
 - 42. Puri, V. P., Higging, H. G., "Possibilities for Reduction of Energy Requirements During Chip Refining", Appita J. 37 (6): 496-501 (1984).
 - 43. Page, D. H., Seth, R., "The Extensional Behaviour of Commercial Mechanical Pulps", Pulp and Paper of Magazine of Canada 80 (8): T235-T237 (1979).
 - 44. Parkinson, A., Tessier, P., Lee, C. L., "Effect of Compression Ratios of Screw Feeders during Multistage Impregnation on Black Spruce Chips and Fibres", Tappi J. 79 (7): 149-156 (1996).
 - 45. Law, K. N., Lanouette, R., Yang, K.C., "A New Approach to Mechanical Pulping—Pretreatment of Chips by Normal-to-grain Compression prior Refining", Tappi J. 83 (9): 1-12 (2000).
 - 46. Law, K. N., Lanouette, R., Yang, K. C., "Effect of Compression on Refining Energy and Pulp Properties of Birth TMP", Appita J. 53 (4): 296-299, 291 (2000).
 - 47. Tay, S. C. H., Ouchi, M. D., Cramer, F. B., "High – Intensity Mechanical Pretreatment and High-Compression Screw Pressing for Deresination of Aspen Kraft Pulps", Pulping Conference, Tappi proceedings, Technology park, Atlanta, USA, pp. 13-20 (1994).
 - 48. Hearn, E. J., "Torsion of Non-Circular and Thin-Walled Sections", in Mechanical of Materials, Vol. 2, Pergamon Press, New York, pp. 570-572 (1985).
 - 49. Kурдин, J. A., Bohn, W. L., "Mechanical Pulping by Extrusion", TAPPI Mechanical Pulping Conference, San Francisco, CA, USA, pp. 265-274 (1984).
 - 50. Heitner, C., Beatson, R. P., Atack, D., "Ultra-High Yield Pulping Part V. High Compression Impregnation of Softwood Chips with Sodium Sulfite - A Method of Producing CMP with High Wet and Dry Strength", International Mechanical Pulping Conference, Stockholm, Sweden, pp. 101-108 (1985). Paperi ja Puu 67 (8): 417-426 (1985).

-
51. Hartler, N., "How Energy can be Reduced in Refiner Mechanical Pulping", *Pulp and Paper Magazine of Canada* 81 (6): T119-123 (1980).
 52. Münster, H., Köfler, H., "Latest Developments In Mechanical Pulping", *International Symposium on High-Yield Pulping: Proceedings (UNDP Project CPR/91/156)*, Chinese Academy of Forestry, Nanjing, China, pp. 217-225 (1997).
 53. Puri, V. P., Higgins, H. G., "Effects of Chip Destructing in Chemical Pulping", *Appita J.* 35 (4): 421-425 (1982).
 54. De choudens, C., Lombardo, G., Michalowicz, G., Robert, A., "Destructuration of Wood Chips in a Cylinder Press: Optical Microscope Study of Structure Modifications", *Paperi ja Puu* 67 (3): 108-111 (1985).
 55. Chibirev, V. E., Kuryatnikov, A. B., Astakhov, Yu. S., Gensler, T. A., Zhalina, V. A., "Preliminary Mechanical Treatment of Chips - Method of Improving the Quality of CMP", *Bum. Promst.* (1): 3-4 (1990).
 56. Uhmeier, A., Salmén, L., "Influence of Strain Rate and Temperature on the Radial Compression Behaviour of Wet Spruce", *J. Eng. Mat. Technol.* 118 (3): 289-194 (1996).
 57. Dumail, J. F., Samén, L., "Compression Behaviours of Saturated Wood Perpendicular to Grain under Large Deformations", *Holzforschung* 51 (4): 296-302 (1997).
 58. Law, K. N., Yang, K. C., "Characteristics of Fiber Separation in Wood Loaded by Normal-to Grain Compression", *Appita J.*, 56 (1): 42-45 (2003).
 59. Dumbleton, D. F., "Longitudinal Compression of Individual Pulp Fibers", *Tappi J.* 55 (1): 127-135 (1972).
 60. Sachs, I. B., "Microscopic Observations during Longitudinal Compression Loading of Single Pulp Fibers", *Tappi J.* 69 (7): 98-102 (1986).
 61. Berg, J. E.; Gradin, P. A., "Effect of Temperature on Fracture of Spruce in Compression, Investigated by Use of Acoustic Emission Monitoring", *J. Pulp Paper Sci.* 26 (8): 294-299 (2000).
 62. Keith, C. T., "Cellulose DP Measurement on Wood Stressed in Longitudinal Compression at Sub-Failure Levels", *Pulp Paper Mag. Can.* 73 (11): 95-96 T345-T346 (1972).
 63. Dinwoodie, J. M., "Structural Changes in the Cell Wall Associated with Compression", *TAPPI STAP* (8): 233-6; discn.: 236-241 (May, 1969).

-
- 64. Portugal, S., Renaud, M., "Destructured Chips: Measurement of Heat-Transfer Coefficient per Unit Volume in Fixed Beds", ATIP Rev. 40 (2): 81-89 (1986).
 - 65. Barbe, M. C., Janknecht, S., Sauriol, J.F., "The Importance of Chip Impregnation on Refiner Pulp Quality", 80th Annual Meeting CPPA Proceedings, Montreal, Canada, pp. A155-A175 (1994).
 - 66. Feng, F., Granfeldt, T., "Changes in the Microstructure of Spruce Wood Chips After Screw Press Treatment", J. Pulp Paper Sci. 22 (4): J140-J145 (1996).
 - 67. Backman, M., Lönnberg, B., Ebeling, K., Henricson, K., Laxén, T., "Impregnation-Depolymerization-Extraction Pulping", Paperi ja Puu, 76 (10): 644-648 (1994).
 - 68. Nicholas, D. D., Thomas, R. J., "Influence of Steaming on Ultrastructure of Bordered Pit Membrane in Loblolly Pine", Forest Products J. 18 (1): 57-59 (1968).
 - 69. Jameel, H., Chang, H. M., Compere, A., Griffith, B., "Microwaving of Logs to Increase Yield and Decrease Chemical Usage", Pulping Conference Proceedings, TAPPI Press, Seattle, WA, USA, pp. 1027-1036 (2001).
 - 70. Larsson-Brelid, P., Simonson, R., Risman, P. O., "Acetylation of Solid Wood using Microwave Heating. Part 1: Studies of dielectric properties", Holz Roh Werkst 57 (4): 259-263 (1999).
 - 71. Cristian, E., Serban, D.; Talașman, C., Obocea, P., Gavrilescu, D., Pavaleanu, T., Constantin, C., "Introduction of Chips Preimpregnation Stage at Kamyr Digester at Celhart Donaris Braila", Celuloza Hartie 51 (4): 26-36 (2002).
 - 72. Wizani, W., Eder, S., Sinner, M., "Enerbatch Kraft Pulping Process - Progress in Pulp Uniformity and Extended Delignification", Pulping Conference, TAPPI Proceedings, Boston, USA, Book 3, pp.1037-1046 (1992).
 - 73. Malkov, S., Tikka, P., Gullichsen, J., "Towards Complete Impregnation of Wood Chips with Aqueous Solutions, Part 2: Studies on water penetration into softwood chips", Paperi ja Puu 83 (6): 468-473 (2001).
 - 74. Malkov, S., Tikka, P., Gullichsen, J., "Modelling the Process of Water Penetration into Softwood Chips", J. of pulp and paper science 29 (4): 137-143 (2003).
 - 75. Puschmann, G., "Ten Percent Less Wood Consumption; thus Operates the Enerbatch Process in Nettingsdorf", Pap. Osterr. 94 (4): 18 (1994).

-
- 76. Ulmeier, A., "Pressure-Impregnation Technique for Wood Chips", *J. Pulp Pap. Sci.* 23 (4): J161-J167 (1997).
 - 77. Blodgett, R. M., Genco, J. M., Cole, B. J. W., "Alkaline Peroxide Mechanical Pulping of Northeastern Hardwoods", *Tappi Pulping Conference*, San Francisco, CA, USA, pp. 477-486 (1997).
 - 78. Aho, O., Aho, A., "Process and Equipment for Pretreatment of Cellulosic Raw Material", *Can. Pat.* 1,322,827, Octobre (1993).
 - 79. Mao, B., "Improved Modified Kraft Cooking Part 6: On the Chemicals and Water Balance for the Modified Vapor Phase Cook", *Tappi J.* 79 (5): 188-195 (1996).
 - 80. Wegner, T. H., Horn, R. A., Rosenthal, M. R., "New Press Drying Process Increases Freeness and Yield", *Southern Pulp Paper* 45 (4): 26-29 (1982).
 - 81. Beatson, R. P., Gancet, C., Heitner, C., "Topochemistry of Black Spruce Sulfonation", *Tappi J.* 67 (3): 82-85 (1984).
 - 82. Jackson, M., Ryberg, G., Danielsson, O., "Chemical Pretreatment of Chips in Mechanical Pulp Production", *Pulp and Paper* 55 (10): 114-118 (1981).
 - 83. Bohn, W. L., Sferrazza, M. J., "Alkaline Peroxide Mechanical Pulping; Revolution in High-Yield Pulping", *International Mechanical Pulping Conference Proceedings*, Helsinki, Finland, pp. 184-200 (1989).
 - 84. Bengtsson, G., Simonson, R., Heitner, C., Beatson, R., Ferguson, C., "Chemimechanical Pulping of Birchwood Chips. (2). Studies on Impregnation of Wood Blocks Using Scanning Electron Microscopy and Energy Dispersive X-Ray Analysis", *Nordic Pulp Paper Res. J.* 3 (3): 132-137 (1988).
 - 85. Lee, C. L., Hatton, J. V., "Uniformity of Sodium Sulfite Distribution in Impregnated Black Spruce [*Picea mariana*] Chips", *International Mechanical Pulping Conference Proceedings*, Tappi Press, Atlanta, USA, pp. 253-258 (1991).
 - 86. Sferrazza, M. J., "Optimization of Chip Impregnation and Cooking Yields Superior CTMP", *Pulp and Paper* 60 (8): 56-59 (1986).
 - 87. Reis, R., "New Developments with Millar Western's Aspen (*Populus*) Alkaline Peroxide Pulp (BCTMP)", *Pacific Paper Expo Technical Conference Proceedings*, Canadian Papermaker, Vancouver, prog. 1: pulping, pp 1-14-0 – 1-14-34 (1990).

-
88. Ahlen, A., Orgill, B., Falk, B., Ryrberg, G., "The Defibrator Systems for Chemimechanical Pulping of Hardwoods for Newsprint", International Mechanical Pulping Conference proceedings, Paptac Press, Toronto, Canada, pp. 247-255 (1979).
 89. Dines, R. E., Tyminski, A., "The New Vapour Phase SCMP Process", 69th CPPA Annual Meeting, Montreal, Canada, pp. A281-A285 (1983).
 90. Stone, J. E., Green, H. V., "Penetration and Diffusion into Hardwoods", Tappi J. 42 (8): 700-709 (1959).
 91. Robertsen, L., Lonnberg, B., "Diffusion in Wood, Part 1. Theory and Apparatus", Paperi ja Puu 73 (6): 532-535 (1991).
 92. Robertsen, L., Lonnberg, B., "Diffusion in Wood, Part 2. The Effect of Concentration and Temperature", Paperi ja Puu 73 (7): 635-639 (1991).
 93. Kreituss, A., Druz, N., Chirkova, E., Luse, I., "Estimation of Diffusion and Distribution of Chemical Compounds in Wood", Wood and Pulping Chemistry, pp. 13-19 (1989).
 94. Kazi, K. M. F., Gauvin, H., Jollez, P., Chornet, E., "A Diffusion Model for the Impregnation of Lignocellulosic Materials", Tappi J. 80 (11): 209-219 (1997).
 95. Kazi, K. M. F., Chornet, E., "A Diffusion Model for the Chemical Impregnation of hardwoods and its Significance for Rapid Steam Treatment", Paperi ja Puu, 80 (1): 41-48 (1998).
 96. Malkov, S., Tikka, P., Gullichsen, J., "Towards Complete Impregnation of Wood Chips with Aqueous Solutions, Part 3. Black Liquor Penetration into Pine Chips", Paperi ja Puu 83 (8): 605-609 (2001).
 97. Dhamodaran, T. K., Gnanaharan, R., "Optimizing the Schedule for CCA Impregnation Treatment of Rubber Wood", Holz Roh Werkst 59 (4): 294-298 (2001)
 98. Malkov, S., Tikka, P., Gullichsen, J., " Towards Complete Impregnation of Wood Chips with Aqueous Solutions, Part 4 : Effects of Front-end Modifications in Displacement Batch Kraft Pulping", Paperi ja Puu 84 (8), pp. 526-530 (2002).
 99. Kong, F. Chen, J., Yang, G., Li, Z., Sun, L., "APMP Pulping of the Triploid of *Populus Toomentosa*", Chung Kuo Tsao Chih 22 (5): 15-18 (2003).
 - 100 Stone, J. E., Förderreuther, C., "Studies of Penetration and Diffusion into Wood", Tappi J. 39 (10): 679-683 (1956).

-
101. Kerner, G., "Colour Reaction for the Detection of Preservatives in Wood", Holzinindustrie 22 (9): 275-278 (1969).
 102. Fengel, D., "The Distribution of Aqueous Solutions within Wood", J. Polymer Sci. 36: 141-152 (1971).
 103. Stone, J. E., "The Penetrability of Wood", Pulp and Paper Mag. Can. 57 (7): 139-145 (1956).
 104. Paranyi, N. I., Rabinovitch, W., "Determination of Penetration Rate of Liquid Media into Wood Using a Quartz Spiral Balance- part1: Water and Air-Dry Spruce Chip", Pulp and Paper Mag. Can. 56 (C): 163-170 (1955).
 105. Woods, N. I., "Determination of Penetration Rates of Liquid Media into Wood Using a Quartz Spiral Balance- part1: Water and Pre-Treated Spruce Chip", Pulp and Paper Mag. Can. 57 (4): 142-151 (1955).
 106. Talton, J. H., Jr., Cornell, R. H., "Diffusion of Sodium Hydroxide in Wood at High pH as a Function of Temperature and the Extent of Pulping", Tappi J. 70 (3): 115-118 (1987).
 107. Stone, J. E., "The Effective Capillary Cross-Sectional Area of Wood as a Function of pH", Tappi J., 40 (7): 539-543 (1957).
 108. Ekman, K. H., Fogelberg, B. C., "Impregnation on Sulphate Cooking Studied by Means of Radioactive Sulphur", Paperi ja Puu 48 (4): 175-182 (1966).
 109. Jensen, W., Fogelberg, B. C., Johansson, S., "Studies on the Possibilities of Using Radioactive Tracers to Follow Penetration of Cooking Liquors into Wood", Paperi ja Puu 42 (7): 393-400 (1960).
 110. Bengtsson, G., Simonson, R., "Chemimechanical Pulping of Birch Wood Chip", Paperi ja Puu 64 (3): 187-193 (1984).
 111. Surma-Slusarska, B., Rutkowaski, J., Reimschussel, W., "Study of Sulfite Cooking Liquor Penetration into Wood by Radioisotope Methods", Przeglad Papier 32 (4): 118-125 (1976).
 112. Gardner, P. E., Tyminski, A., "SCMP Chemimechanical Pulping Process – Chip Sulfonation Studies", Canadian Wood Chem. Symp., Niagara Falls, Canada, pp.85-92 (1982).

-
113. Kasper, J. B., Chow, S., "Determination of Resin Distribution in Flakeboard Using X-Ray Spectrometry", *Forest Prod. J.* 30 (7): 37-40 (1980).
 114. Bengtsson, G., Simonson, R., Heitner, C., Beatson, R., Ferguson, C., "Studies of the Impregnation of Birch Using Scanning Electron Microscopy and Energy Dispersive X-Ray Analysis", *International Symposium on Wood and Pulping Chemistry*, Vancouver, Canada, pp.57-63 (1985).
 115. Dickinson, D. J., Sorkoh, N. A. A. H, "Microdistribution of Wood Perservatives", *Proc. Workshop Plant Sci. Applns. SEM (IIT Res. Inst., Chicago)*, Vol. 2, Part VII: 549-554 (1976).
 116. Wallström, L., Lindberg, K. A. H., "Distribution of Added Chemicals in the Cell Walls of High Temperature dried and Green Wood of Swedish Pine, *Pinus sylvestris*", *Wood Science and Technology* 34: 327-336 (2000).
 117. Costanza, V.; Miyara, A. J., "Dynamics of Hardwood Impregnation", *Holzforschung* 54(2): 183-188 (2000).
 118. Glasstone, S. et al., "The Theory of Rate Processes", 1st ed. McGraw-Hill, New York, (1941).
 119. Kimpe, E., Morin, F., Kubes, G. J., "3-Dimensional Computer Simulation Model for Liquor Penetration in CMP and CTMP Processes", *J. of Pulp and Paper Science* 25 (1): 15-20 (1999).
 120. Farkas, J., "Quality of Chips and its Effect on the Quality of Kraft Pulp", *Vyskum. Prace Odboru Papiera Celulozy* 33: V 49-52 (1978).
 121. Havu, T., "Up Pulping Profitability with High-Quality Chips", *Paper Asia* 13 (6): 14-17 (1997).
 122. Broderick, G., Cacchione, E., Heroux, Y., "Importance of Distribution Statistics in the Characterization of Chip Quality", *Tappi Pulping Conference: Proceedings*, Tappi Press, pp. 535-550 (1996).
 123. V'yukov, B. E., Zolochevskaya, N. V., Shchadilov, E. V., Zhalina, V. A., Bogdanov, V. V., "Method of Economizing on Pulpwood", *Bumazh. Prom.* (2): 15-16 (1987).
 124. Jimenez, G., McKean, W. T., Gustafson, R. R., "Using a Kraft Pulping Model to Improve Pulp Uniformity", *Tappi J.* 73 (7): 173-176 (1990).

-
125. Akhtaruzzaman, A. F. M., Virkola, N. -E., "Influence of Chip Dimension in Kraft Pulping (2). Present State and Scope of the Study", *Paperi ja Puu* 61 (10): 629-634 (1979).
 126. Akhtaruzzamam, A. F. M., Virkola, N.-E., "Influence of Chip Dimensions in Kraft Pulping", *Paperi ja Puu*, 62 (10): 607-614 (1980).
 127. Robertsen, L., Lonnberg, B., "Significance of Chip Thickness in CRMP and RMP: Laboratory Study with Pine Chips", *Paperi ja Puu* 68 (1): 36-41 (1986).
 128. Robertsen, L., Lonnberg, B., "Significance of Chip Thickness in CRMP and RMP (2) Laboratory Study with Pine Chips", *Paperi ja Puu* 68 (12): 932- 940 (1986).
 129. Robertsen, L., "Significance of Chip Thickness in CRMP and RMP. (3). Laboratory Study with Pine [*Pinus*] Chips", *Pap. ja Puu* 71 (5): 565, 567, 569, 571, 573-574 (May 1989).
 130. Lonnberg, B., Robertsen, L., Sarri, K., "Chemical Diffusion in Wood", *For. Prod. Symp. Proc.*, Miami Beach and Boston, USA, pp.49-55 (1992).
 131. Law, K. N., Lapointe, M., Valade, J. L., "Effects of Chip Thickness and Process Conditions on the Quality of White Birch Ultrahigh-Yield Pulps", 72nd CPPA Annual Meeting, Montreal, Canada, pp. B149-B153 (1986).
 132. Back, E. L., "The Bonding Mechanism in Hardwood Manufacture", *Holzforschung* 41 (4): 247-258 (1987).
 133. Klemm, D., Philipp, B., Heinze, T., heinze, U., Wagenknecht, W., "Comprehensive Cellulose Chemistry", Vol. II, 2nd ed., WILEY-VCH, Germany, pp34-49 (2001).
 134. Sawabe, O., "Pore Structure in Swollen Cotton Cellulose Fibers: Effects of Treatment with Sodium Hydroxide", *J. Japan Wood Res. Soc.* 26 (4): 262-267 (1980).
 135. Alamo, J., Ouchi, M. D., Paris, J., Wearing, J. T., "Deresination of Ultra-High-Yield Pulps part II: Screw Press Study", *Pulp Paper Can.* 92 (9): 47-51 (1991).
 136. Comstock, G. L., "Directional Permeability of softwoods", *Wood Fibre* 1: 283-289 (1970).
 137. Sauriol, J. F., "Impact de l'Imprégnation de Copeaux de Bois Lors de la Mise en Pâte à Haut Rendement", Mémoire de maîtrise présenté à Université du Québec à Trois-Rivières, Canada (1993).

-
- 138. Easterling, K. E., Harrysson, R., Gibson, L. J., Ashby, M. F., "On the Mechanics of Balsa and Other Woods", *Proceedings Royal Society London*, A383. pp. 31-34 (1982).
 - 139. Thomas, R. J., "Mechanism of Pit Aspiration", *STFI Medd. No. 772A*: 16-32 (1981).
 - 140. Hart, C. A., Thomas, R. J., "Mechanism of Bordered Pit Aspiration as Caused by Capillarity", *Forest Products J.* 17 (11): 61-88 (1967).
 - 141. Thomas, R. J., Kringstad, K. P., "The Role of Hydrogen bonding in Pit Aspiration", *Holzforschung* 25 (5): 143-149 (1971).
 - 142. McCabe, W.L., Simth, J.C., Harriott, P., "Unit operations of Chemical Engineering", 5th Ed, McGraw-Hill, New York, USA, pp.88, 875, 1037 (1993).
 - 143. Klemm, D., Philipp, B., Heinze, T., heinze, U., Wagenknecht, W., "Comprehensive Cellulose Chemistry", Vol. I, 1st ed., WILEY-VCH, pp25-29 (2001).
 - 144. Concord Web Team, "Workbench – Solutions: Dissolving", Uniform Resource Locator http://workbench.concord.org/web_content/unitIII_mini/act_sol_solutions.html, (2002).
 - 145. Salmén, N. L., Fellers, C., "Fundamentals of Energy Consumption during Viscoelastic and Plastic Deformation of Wood", *CPPA Transaction Technique Section 8* (4): TR93-99 (Dec. 1982).
 - 146. Bergander, A., Salmén, L., "Lamellar Cracks, Do They Appear During Radial Compression of Wood?" *Nordic Pulp and Paper Research J.* 12 (4): 216-219 (1997).
 - 147. Anonymous. Uniform Resource Locator <http://www.edpsciences.org/articles/forest/pdf> (2000).
 - 148. Dumail, J. F., Salmén, L., "Compression Behaviour of Spruce Wood under Large Plastic Deformations", *Nordic Pulp and Paper Research J.* 11 (4): 239-242 (1996).
 - 149. Salmén, L., Tigerström, A. C., Fellers, C., "Fatigue of Wood – Characterization of Mechanical Defibration", *J. Pulp Paper Science* 11 (3): 68-73 (1985).
 - 150 Hunt, K., Hatton, J. V. "Specific Gravity and Chemical Properties of Commercial Thinnings from Six Softwood Species", *Pulp & Paper Canada* 96 (11): T368-389 (1995).
 - 151. Somogy, D., "Surface Tension Waves 1", Uniform Resource Locator <http://www.wooster.edu/physics/JrIS/Files/Derek.pdf> (2002).

-
152. Scheikl, M.; Dunky, M., "Measurement of Dynamic and Static Contact Angles on Wood for Determination of its Surface Tension and the Penetration of Liquids into the Wood Surface", *Holzforschung* 52 (1): 89-94 (1998).
 153. Kollmann, F. F. P., Côté, W. A. Jr, "Principles of Wood Science and Technology", Vol. I, Springer – Verlag, Heidelberg Berlin, Germany, pp 189-195, 235-236, 292-419 (1968).
 154. Phillips, E. W. J., "Movement of the Pit Membrane in Coniferous Woods, with Special Reference to Preservative Treatment", *Society of Foresters of Great Britain*, London. 7 (1): 109-120 (1933).
 155. Liese, W., Bauch, J., "On the Closure of Bordered Pits in Conifers", *Wood Science Technol.*, 1(1): 1-13 (1967).
 156. Hart, C. A. Thomas, R. J., "Mechanism of Bordered Pit Aspiration as Caused by Capillarity", *For. Prod. J.* 17 (11): 61-68 (1967).
 157. Comstock, G. L., Côté, W. A., Jr. "Factors Affecting Permeability and Pit Aspiration in Coniferous Sapwood", *Wood Science and Technology* 2 (4): 279-291(1968).
 158. Terziev, N., "Industrial Kiln Drying and its Effect on Microstructure, Impregnation and Properties of Scots Pine Timber Impregnated for Above Ground Use", *Holzforschung*: 56(4), pp 428-433 (2002).
 159. Booker, R. E., Evans, J. M., "The Effect of Drying Schedule on the Radial Permeability of *Pinus radiata*", *D. Don. HolzRoh- Werkstoff* 52, pp150-156 (1994).
 160. Maass, O., "The Problem of penetration", *Pulp and Paper Magazine of Canada* 54 (7): 98-103 (1953).
 161. Stamm, A. J., "Diffusion and Penetration Mechanism of Liquids into Wood", *Pulp and Paper Magazine of Canada* 54 (2): 54-63 (1953).
 162. Kraev, L. N., Korolkov, I. I., "Intensification of Dilute Sulphuric Acid Penetration into Wood by Presteaming", *Gidroliznaja Lesochimicheskaja Promyshlennost* 22 (2): 6-7 (1969).
 163. Sebastian, L. P., Côté, W. A., Jr., Skaar, C., "Relationship of Gas Phase Permeability to Ultrastructure of White Spruce Wood", *Forest Prod. J.* 15 (9): 394-404 (1965).
 164. Link, J. "Viscosity Water Temperature", Uniform Resource Location <http://www.madsci.org/posts/archives/ Apr2003/1049926727.Ph.r.html> - 4k -, (Mar. 2003).

-
165. Montgomery, D. C., "Design and analysis of experiments", 3rd ed., Wiley, New York, États-Unis, (1991).

Annexe I. Conditions du dégazage et résultats des essais

Taux de compression	Ajustement d'humidité	Densité (D) g/cm ³	Temps de dégazage, min				
			0	1	2	5	10
Teneur en eau, gEau/gBois							
34%	non	0,40	0,90	1,52	1,54	1,55	1,55
		0,45	0,69	1,16	1,26	1,26	1,27
		0,47	0,67	1,12	1,13	1,13	1,13
		D Moyenne	0,75	1,26	1,31	1,31	1,32
68%	non	0,40	0,48	1,61	1,71	1,8	1,83
		0,45	0,41	1,51	1,58	1,68	1,68
		0,47	0,45	1,51	1,58	1,66	1,66
		D Moyenne	0,45	1,54	1,62	1,71	1,72
85%	non	0,40	0,36	2,30	2,44	2,63	2,73
		0,45	0,34	2,01	2,14	2,29	2,29
		0,47	0,37	2,07	2,08	2,10	2,12
		D Moyenne	0,36	2,13	2,22	2,34	2,38
0%	oui, 22 °C	0,39	0,39	1,43	1,54	1,58	1,56
		0,45	0,39	1,30	1,39	1,39	1,40
		0,47	0,39	1,18	1,25	1,25	1,28
		D Moyenne	0,39	1,30	1,39	1,40	1,41
34%	oui, 22 °C	0,39	0,39	1,06	1,18	1,17	1,12
		0,45	0,39	0,94	1,00	1,14	1,10
		0,47	0,39	0,82	0,87	0,95	0,99
		D Moyenne	0,39	0,93	1,01	1,08	1,06
34%	oui, 50 °C	0,39	0,39	0,88	1,12	1,00	/
		0,45	0,39	0,69	1,16	0,76	/
		0,47	0,39	0,65	0,97	0,81	/
		D Moyenne	0,39	0,74	1,08	0,85	/

Annexe II. Variables, plan d'expérience et résultats de teneur en eau (densité moyenne de 0,43 g/cm³)

Gradient de Pression mmHg	Taux de compression %	Temps d'imprégnation, min						
		0	1	2	5	20	60	120
		Teneur en eau, gEau/gBois						
620	34	0,51	1,01	1,06	1,15	1,23	1,27	1,28
620	68	0,39	1,43	1,47	1,50	1,51	1,53	1,54
620	85	0,37	2,08	2,09	2,10	2,11	2,13	2,15
410	34	0,51	0,66	0,66	0,67	0,70	0,71	0,74
410	68	0,39	1,14	1,14	1,16	1,17	1,19	1,21
410	85	0,37	1,84	1,85	1,86	1,87	1,87	1,88
200	34	0,51	0,63	0,64	0,66	0,70	0,72	0,73
200	68	0,39	0,92	0,95	0,98	1,02	1,05	1,05
200	85	0,37	1,77	1,79	1,80	1,83	1,84	1,84

Annexe III. Conditions expérimentales et réponses sur l'absorption de la liqueur

Variables			Absorption liqueur, gLiqueur/gBois					
Comp (%)	T (°C)	P (mm Hg)	t (min)					
			1	5	15	60	120	240
0	80	150	0,651	0,779	0,802	0,871	0,900	0,914
0	60	150	0,557	0,683	0,726	0,813	0,871	0,885
0	40	150	0,503	0,622	0,678	0,755	0,813	0,842
34	80	150	0,929	1,001	1,030	1,088	1,123	1,197
34	60	150	0,825	0,885	1,008	1,045	1,082	1,141
34	40	150	0,784	0,900	0,929	0,987	1,088	1,132
68	80	150	1,227	1,237	1,244	1,253	1,257	1,262
68	60	150	1,169	1,176	1,192	1,212	1,222	1,232
68	40	150	1,106	1,104	1,136	1,156	1,179	1,197
0	80	760	0,204	0,219	0,262	0,393	0,449	0,541
0	60	760	0,150	0,193	0,233	0,349	0,422	0,523
0	40	760	0,117	0,184	0,234	0,321	0,401	0,480
34	80	760	0,206	0,235	0,335	0,410	0,486	0,562
34	60	760	0,188	0,250	0,294	0,379	0,421	0,544
34	40	760	0,161	0,190	0,272	0,359	0,444	0,494
68	80	760	0,393	0,429	0,571	0,613	0,696	0,845
68	60	760	0,360	0,393	0,533	0,610	0,669	0,813
68	40	760	0,332	0,375	0,525	0,652	0,683	0,773

Annexe IV. Conditions d'imprégnation et réponses (absorption de produits chimiques)

Variables			Absorption de NaOH (mgNaOH/gBois)					
Com	T	V	t (Temps) (min)					
%	°C	(code)	1	5	15	60	120	240
68	80	1	43.02	47.88	54.51	70.64	77.06	87.36
34	80	1	32.61	40.51	44.96	55.96	63.53	76.25
0	80	1	19.44	29.08	37.68	52.08	60.72	72.72
68	80	0	14.03	20.42	33.47	50.59	59.86	75.56
34	80	0	12.53	16.67	23.78	36.53	45.32	61.79
0	80	0	9.76	13.83	24.45	34.86	42.23	58.50
68	60	1	36.83	50.08	52.35	62.96	68.36	75.20
34	60	1	29.23	36.43	41.47	54.03	64.95	74.84
0	60	1	14.33	25.53	29.03	42.59	48.67	51.91
68	60	0	16.66	24.23	28.40	41.11	48.52	59.99
34	60	0	8.53	14.36	18.65	31.04	36.62	47.79
0	60	0	7.99	9.60	15.05	30.61	37.10	51.15
68	40	1	32.62	40.39	49.61	56.77	65.11	68.82
34	40	1	28.94	34.23	40.31	46.50	50.44	59.36
0	40	1	16.43	21.90	26.79	35.28	41.12	46.89
68	40	0	15.25	23.07	26.67	39.24	50.57	57.26
34	40	0	11.12	16.77	19.09	27.55	34.15	46.04
0	40	0	6.41	8.45	13.29	24.55	31.30	41.89

Annexe V. Matrice d'expérience et résultats expérimentaux.

Essais	Compression		Épaisseur	Longueur	Time	Absorption chimique			
	Xtype	Xc (Taux)				Xe	Xl	Xt	Y (mgNaOH/gBois)
1	PaV	0,5	-	-	-	-	42,91	53,89	39,62
2	PaV	0,5	-	+	-	-	59,8	59,05	52,03
3	PaV	0,5	+	-	-	-	53,51	46,62	58,08
4	PaV	0,5	+	+	-	-	68,64	54,53	52,28
5	PaV	0,5	-1,41	0	-	-	52,13	56,14	51,45
6	PaV	0,5	1,41	0	-	-	58,79	53,38	66,14
7	PaV	0,5	0	-1,41	-	-	51,8	/	/
8	PaV	0,5	0	1,41	-	-	52,69	67,82	63,85
9	PaV	0,5	0	0	-	-	53,45	45,92	47,71
10	PaV	0,5	-	-	+	-	82,14	73,39	/
11	PaV	0,5	-	+	+	-	89,11	88,08	84,42
12	PaV	0,5	+	-	+	-	79,51	78,77	/
13	PaV	0,5	+	+	+	-	91,98	90,46	/
14	PaV	0,5	-1,41	0	+	-	79,42	79,32	/
15	PaV	0,5	1,41	0	+	-	82,06	90,94	83,82
16	PaV	0,5	0	-1,41	+	-	81,21	/	/
17	PaV	0,5	0	1,41	+	-	74,82	/	82,35
18	PaV	0,5	0	0	+	-	82,31	75,8	83,43
19	CR	0,68	-	-	-	-	21,21	/	/
20	CR	0,68	-	+	-	-	12,05	/	/
21	CR	0,68	+	-	-	-	19,77	/	/
22	CR	0,68	+	+	-	-	17,78	/	/
23	CR	0,68	-1,41	0	-	-	17,42	/	/
24	CR	0,68	1,41	0	-	-	10,46	/	/
25	CR	0,68	0	-1,41	-	-	18,55	/	/
26	CR	0,68	0	1,41	-	-	14,15	/	/
27	CR	0,68	0	0	-	-	16,46	/	/
28	CR	0,68	-	-	+	-	61,52	/	/
29	CR	0,68	-	+	+	-	47,35	/	/
30	CR	0,68	+	-	+	-	51,97	/	/
31	CR	0,68	+	+	+	-	45,7	/	/
32	CR	0,68	-1,41	0	+	-	55,54	/	/
33	CR	0,68	1,41	0	+	-	44,19	/	/
34	CR	0,68	0	-1,41	+	-	58,07	/	/
35	CR	0,68	0	1,41	+	-	46,92	/	/
36	CR	0,68	0	0	+	-	46,28	/	/

Essais	Compression		Épaisseur	Longueur	Time	Absorption chimique		
	Xtype	Xc (Taux)	Xe	Xl	Xt	mgNaOH/gBois		
37	CR	0,34	-	-	-	12,6	12,5	12,26
38	CR	0,34	-	+	-	10	9,98	10,1
39	CR	0,34	+	-	-	11,25	10,83	9,83
40	CR	0,34	+	+	-	4,97	5,24	6,97
41	CR	0,34	-1,41	0	-	12,75	12,8	12,78
42	CR	0,34	1,41	0	-	5,7	6,7	8,67
43	CR	0,34	0	-1,41	-	12,67	11,77	11,22
44	CR	0,34	0	1,41	-	7,68	7,54	7,65
45	CR	0,34	0	0	-	12,31	11,69	11,56
46	CR	0,34	-	-	+	49,98	47,22	48,05
47	CR	0,34	-	+	+	43,36	43,01	41,2
48	CR	0,34	+	-	+	43,13	43,28	42,6
49	CR	0,34	+	+	+	29,55	29,72	33,11
50	CR	0,34	-1,41	0	+	53,31	51,93	51,51
51	CR	0,34	1,41	0	+	31,74	32,54	30,67
52	CR	0,34	0	-1,41	+	48,14	47,68	47,35
53	CR	0,34	0	1,41	+	33,66	32,29	31
54	CR	0,34	0	0	+	39,33	37,69	36,15
55	CR	0	-	-	-	13,07	12,43	14,55
56	CR	0	-	+	-	9,6	10,87	10,65
57	CR	0	+	-	-	9,98	9,14	9,12
58	CR	0	+	+	-	6,16	5,58	7,09
59	CR	0	-1,41	0	-	12,81	11,4	11,37
60	CR	0	1,41	0	-	6,44	5,79	5,62
61	CR	0	0	-1,41	-	13,12	11,66	13
62	CR	0	0	1,41	-	5,49	5,54	5,16
63	CR	0	0	0	-	7,11	6,92	7,25
64	CR	0	-	-	+	45,95	49,99	46,99
65	CR	0	-	+	+	39,62	39,4	40,45
66	CR	0	+	-	+	39,74	37,16	40,87
67	CR	0	+	+	+	27,55	27,4	29,51
68	CR	0	-1,41	0	+	51,96	52,82	49,99
69	CR	0	1,41	0	+	30,66	33,16	29,15
70	CR	0	0	-1,41	+	47,85	48,05	48,13
71	CR	0	0	1,41	+	34,42	27,4	29,86
72	CR	0	0	0	+	34,91	32,08	31,38