
■ Optimisation d'un traitement thermique du bois via un plan factoriel fractionnaire

L. Duchez et R. Guyonnet

Centre SPIN, Équipe Physico-Chimie des Matériaux, École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 158 Cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne Cedex 2, France

Retification is a mild pyrolysis which considerably improves dimensional stability and resistance to biodegradation of wood. We analyzed the effects of parameters linked to wood species and process operation on retification performances (treatment duration, hygroscoy and mechanical properties of wood). Treatments were conducted at our pilot scale kiln following an fractional factorial design 2^{5-2} . We concluded to the need of an inert atmosphere in the kiln and chose the best treatment temperatures. Two similar resinous reacted differently to retification. The influence of pyrolysis duration entitles us to be confident in the robustness of our process and in its soon-to-be industrialization.

Le bois présente de nombreux atouts. C'est un bon isolant thermique et phonique. Il est esthétique et facile à usiner. Rapporté à son poids, il est plus résistant que la plupart des matériaux de construction, sauf en cisaillement [1]. Le bois est enfin un matériau renouvelable et peu énergivore pendant sa mise en œuvre. Il souffre toutefois de son origine naturelle. Il est hétérogène, anisotrope et hautement variable : ses propriétés diffèrent suivant l'orientation considérée et d'un échantillon à l'autre. Ses dimensions

changent sous l'effet de l'humidité. Enfin, il est sensible à l'attaque des insectes et des micro-organismes.

On réduit actuellement ces défauts en imprégnant chimiquement le bois pour le rendre imputrescible (traitement au créosote, au Chrome-Cuivre-Arsenic...) ou en important des essences réputées pour leur stabilité (western red cedar, teck...), mais chères. On comprend alors l'intérêt d'un traitement thermique, simple et non polluant (sans ajout de produits chimiques), qui permet de valoriser les essences européennes à croissance rapide (sapin, pin maritime, peuplier, hêtre...) en les rendant imputrescibles et stables. Un tel procédé est breveté et développé par l'École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne sous le nom de Rétification® [2]. Il se trouve en phase d'industrialisation [3].

Nous présenterons d'abord le procédé et les méthodes pour évaluer les propriétés physico-mécaniques du bois. Nous utiliserons ensuite un plan d'expériences fractionnaire 2^{5-2} pour analyser l'influence de paramètres pertinents sur les performances de la réтификаtion et proposer une première optimisation de notre four pilote.

Principe de la réтификаtion

Rappelons rapidement que le bois est l'association de 3 polymères : la cellulose, la lignine et les hémicelluloses,

classées par hydrophilie croissante. Leur affinité pour l'eau est principalement due à la présence de nombreux groupements hydroxyle. Une pyrolyse ménagée du bois va craquer les hémicelluloses et commencer à modifier la lignine du bois (Fig. 1). Il se produit de plus des réactions de condensation et de polymérisation des sous-produits sur le réseau de lignine, i.e. des phénomènes de réticulation, d'où le nom de réтификаtion [4].

La disparition des hémicelluloses abaisse l'hygroscopicité et donc l'instabilité dimensionnelle du bois. La dégradation des nutriments et la densification du réseau de lignine, associées à une plus basse humidité d'équilibre (environ divisée de moitié), améliorent la durabilité du bois rétifé [5].

Matériels et méthodes

Four pilote : description et conduite

Notre laboratoire dispose d'un four pilote cylindrique de 300 litres, à chauffage électrique (Fig. 2). Une turbine brasse l'atmosphère du four et permet ainsi d'homogénéiser les échanges par convection. Nous pouvons traiter des planches mesurant jusqu'à 1 mètre de longueur, de différentes largeurs et épaisseurs. Ces planches sont disposées sur un plateau mécano-soudé en acier, muni d'une servante mobile.

La conduite de la rétificaion consiste en une montée progressive en température jusqu'à la pyrolyse. On refroidit ensuite jusqu'à température ambiante. Les gaz produits pendant le séchage et la pyrolyse sont récupérés avec un condenseur à eau. Le condensat est incinéré. La partie incondensable, principalement constituée de CO₂ et de N₂, peut être recyclée pour rendre inerte l'atmosphère du four.

Mesures des propriétés physico-mécaniques du bois

• Hygroscopicité

Nous appliquons la norme NF B 51-006 pour mesurer l'hygroscopicité du bois [6]. Le retrait volumique total est la variation des dimensions (précision de 0,01 mm) de cubes de bois entre l'état saturé en eau et l'état anhydre. On a alors :

$$R_v = \frac{\text{Volume}_{\text{saturé}} - \text{Volume}_{\text{anhydre}}}{\text{Volume}_{\text{saturé}}} \times 100. \quad (1)$$

Le point de saturation des fibres correspond à l'humidité à partir de laquelle l'eau cesse de s'adsorber à la surface des fibres (faisant gonfler le bois) pour circuler librement à l'intérieur du bois sous forme liquide (sans faire gonfler le bois). On le détermine en traçant la courbe des retraits.

• Propriétés mécaniques

Nous avons adopté la norme NF B 51-008 pour déterminer le module de rupture en flexion statique 4 points d'une éprouvette sans défauts [6]. Il s'agit de la contrainte de rupture par flexion sous une charge progressivement croissante exercée perpendiculairement au fil du bois (Fig. 3).

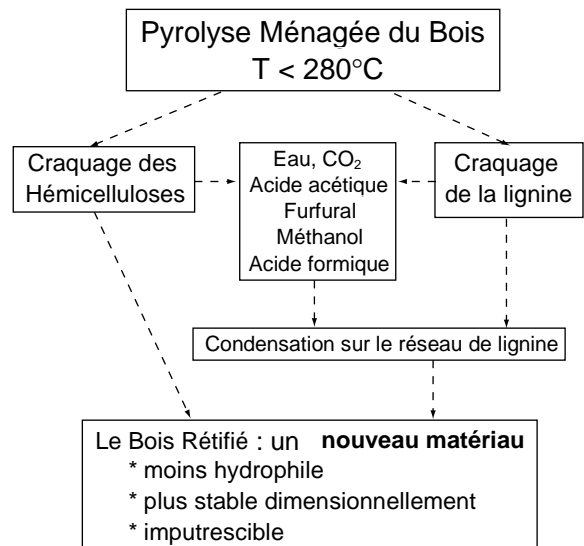


Figure 1. Principe de la rétificaion.



Figure 2. Four pilote de rétificaion.

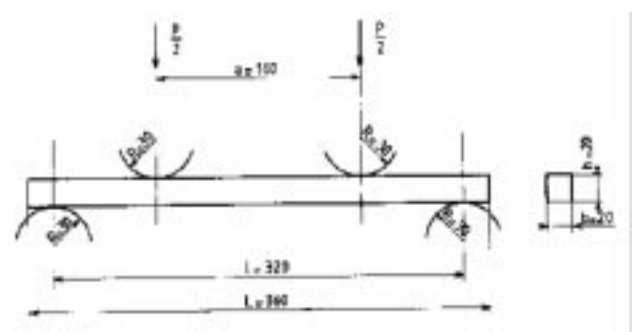


Figure 3. Schéma de principe de la flexion statique 4 points.

La contrainte conventionnelle de rupture, σ_{FH} (exprimée en MPa), est donnée par :

$$\sigma_{FH} = \frac{3 \times P \times (l - a)}{2 \times b \times h^2} = \frac{240 \times P}{b \times h^2} \quad (2)$$

où P est la charge totale appliquée à la rupture (N),
 l est la distance (mm) entre les axes des appuis,
 a est la distance (mm) entre les axes des têtes de chargement,
 b est la hauteur (mm) de l'éprouvette,
 h est la base (mm) de l'éprouvette.

Les propriétés sont normalement mesurées pour une humidité de référence de 12 %. Si l'humidité H de l'éprouvette diffère de 12 %, mais qu'elle est comprise entre 10 et 14 %, on utilise le fait que le module décroît linéairement avec l'humidité [7] et on applique la relation :

$$\frac{\sigma_F(12\%)}{\sigma_{FH}} = \frac{b-12}{b-H} \quad (3)$$

où $b = 42$ en première approximation. Selon [7], $b = 46$ est plus précis pour le pin sylvestre.

Nous calculons enfin le module spécifique, i.e. le module de rupture divisé par la masse volumique.

Méthodologie et choix de l'échantillonnage

Pour chacune des expériences, nous utilisons 12 planches brutes de 1500 mm × 95 mm × 27 mm que nous coupons en deux. Nous traitons des planches de 950 mm × 95 mm × 27 mm et nous utilisons les planches complémentaires comme témoins pour comparer l'évolution des propriétés. Les mesures des propriétés physico-mécaniques nécessitent de plus des échantillons dont les côtés soient sensiblement parallèles aux directions radiale, tangentielle et longitudinale : ce qui signifie que nous ne pouvons exploiter que la moitié de nos planches.

Dès lors, si l'on considère une moyenne de 6 planches exploitables, nous prélevons :

- Hygroscopie : 24 cubes de bois rétifé et 24 cubes de bois naturel.
- Flexion statique : 48 éprouvettes de bois rétifé et 24 éprouvettes de bois naturel.

Mise en place du plan factoriel fractionnaire

Facteurs étudiés

De nombreux facteurs liés au bois (espèce, origine géographique...), à la géométrie du réacteur et à sa conduite affectent la réтификаtion. On va ici étudier 5 paramètres grâce à un plan factoriel fractionnaire 2⁵⁻².

- l'espèce : deux résineux proches par leurs propriétés physiques vont-ils réagir de la même façon ?
- T_p : température de pyrolyse,
- t_p : durée de la pyrolyse. Une fois atteinte la consigne T_p , on maintient cette température pendant la durée t_p . Dispose-t-on d'une marge de manoeuvre? Doit-on rejeter des planches qui ont été pyrolysées plus longtemps que prévu ?
- T_1 : température du premier palier de séchage. Peut-on accélérer la réтификаtion avec un premier séchage à haute température, i.e. $T_1 > 100$ °C ?

- N_2 : injection d'azote. Seule la phase de refroidissement présente des risques de dépression et d'entrée d'air. Peut-on se contenter d'injecter de l'azote pendant cette seule étape et considérer que le recyclage des gaz de la réтификаtion suffit à rendre inerte l'atmosphère durant le reste du traitement ?

Réponses

On mesure la durée totale de la réтификаtion, la durée du palier de pyrolyse, le retrait volumique moyen du bois rétifé, son point de saturation des fibres et ses propriétés mécaniques en flexion statique (Fig. 4).

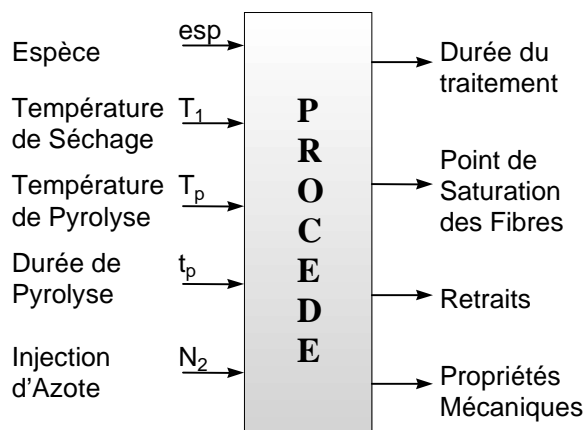


Figure 4. Facteurs et réponses du plan d'expériences.

Génération du plan fractionnaire

Un plan factoriel fractionnaire 2⁵⁻² [8] est généré avec l'espèce (1), la température de pyrolyse T_p (2) et la durée de pyrolyse t_p (3) pour paramètres principaux. On aliase les facteurs T_1 (4) et N_2 (5) avec les interactions probablement les plus faibles, à savoir successivement 123 et 13. D'où la matrice :

Tableau I. Matrice d'expériences.

N° essai	1	2	3	4 = 123	5 = 13	12	23
	esp	T_p	t_p	T_1	N_2	esp. T_p	$T_p.t_p$
1	-	-	-	-	+	+	+
2	+	-	-	+	-	-	+
3	-	+	-	+	+	-	-
4	+	+	-	-	-	+	-
5	-	-	+	+	-	+	-
6	+	-	+	-	+	-	-
7	-	+	+	-	-	-	+
8	+	+	+	+	+	+	+

Facteurs	espèce	T_p (°C)	t_p (mn)	T_1 (°C)	Azote
Niveau -	Sapin	T_p . min	5	< 100	avant la pyrolyse
Niveau +	Pin sylvestre	T_p . max	15	> 100	après la pyrolyse

Les contrastes associés aux facteurs correspondent à la somme des effets et des interactions qui ont la même suite de + et de -. En notation de Box, on les détermine en écrivant que **4 = 123** et **5 = 13** :

- $I_1 = \mathbf{1} + 35 + 234 \quad (4)$
- $I_2 = \mathbf{2} + 45 + 134 \quad (5)$
- $I_3 = \mathbf{3} + 15 + 124 \quad (6)$
- $I_4 = \mathbf{4} + 25 + 123 \quad (7)$
- $I_5 = \mathbf{5} + 13 + 24 \quad (8)$
- $I_{12} = \mathbf{12} + 34 + 145 + 235 \quad (9)$
- $I_{23} = \mathbf{23} + 14 + 125 + 345 \quad (10)$
- $I_1 = \mathbf{I} + 135 + 245. \quad (11)$

Résultats et discussions

Reproductibilité

L'essai n°3 est le plus proche de nos conditions habituelles. Nous l'avons répété 3 fois pour estimer l'erreur expérimentale, i.e. l'intervalle de confiance sur la base d'une distribution de Student (Tab. II).

Tableau II. Expériences de reproductibilité.

Expérience n°	3a	3b	3c	moyenne	écart-type s*t (70 %)
Durée totale (min)	500	490	497	495,7	7,11
Durée (pyrolyse) (min)	30	30	28	29,3	1,60
Retrait Volumique (%)	8,69	9,16	9,1	8,98	0,355
Module de Rupture (MPa)	68,3	61,2	62,4	64,0	5,27
Module Spécifique (MPa/(kg/m3))	0,153	0,14	0,157	0,150	0,0131
Baisse du Module (%)	23,96	24,16	20,66	22,93	2,725

Réponses

Le tableau III donne les réponses du plan :

Tableau III. Réponses du plan.

Expérience n°	1	2	3	4	5	6	7	8
Durée totale (min)	473	520	491	475	523	470	452	510
Durée (pyrolyse) (min)	45	57	29	45	45	45	36	34
Retrait Volumique (%)	10,1	9,9	9,0	7,2	9,2	9,2	8,4	7,3
Module de Rupture (MPa)	81,1	75,2	64,0	65,3	77,8	63,6	76,2	48,2
Module Spécifique (MPa/(kg/m3))	0,189	0,154	0,150	0,139	0,177	0,131	0,174	0,106
Baisse du Module (%)	6,3	23,9	22,9	29,8	12,8	31,8	7,9	40,9

Contrastes

On calcule les contrastes et on les compare avec les erreurs expérimentales. Un facteur dont le contraste (porté sur l'axe

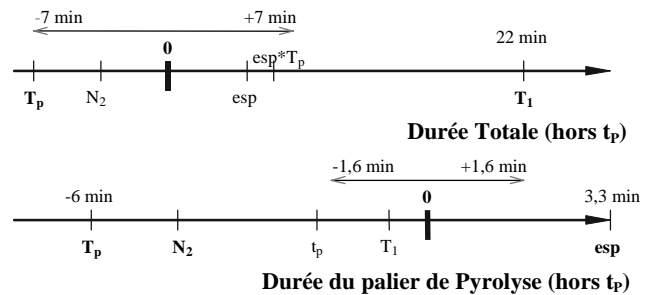


Figure 5. Poids des facteurs sur la durée totale et la durée du palier de pyrolyse.

principal) est supérieur à l'erreur est considéré comme influent. Il faut ensuite prendre garde aux facteurs aliés.

• Durée du traitement

Le principal facteur influant la durée totale est T_1 . Contrairement à ce que l'on pensait initialement, opérer un premier palier de « séchage à haute température » ne va pas accélérer la réтификаtion. Nous avons constaté que le retard apparaissait lorsque la température du bois est comprise entre $T_1(-)$ et $T_1(+)$, c'est-à-dire pendant le début du séchage. Nous aurons besoin d'expériences complémentaires et d'une modélisation poussée des transferts de masse et de chaleur pour interpréter ce phénomène.

Le palier de pyrolyse est plus court pour le sapin et à haute température. Ces 2 facteurs interagissent (Fig. 6). Des réactions exothermiques démarrent en effet à haute température, accélérant la montée en température des planches. Ces réactions sont plus fortes pour le sapin que pour le pin sylvestre. La durée totale et la durée du palier de pyrolyse sont donc plus courtes pour le sapin pyrolysé à haute température.

De manière logique, injecter de l'azote froid avant la pyrolyse rallonge légèrement le palier de pyrolyse. On remarque de plus un effet artificiel de t_p sur la durée du palier de pyrolyse : t_p est alié à l'espèce et à l'injection d'azote (Eq. 6).

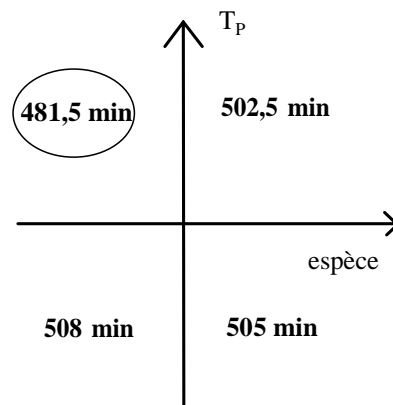


Figure 6. Interaction entre l'espèce et T_p pour la durée totale du traitement.

• *Hygroscopie du bois*

C'est principalement la température de pyrolyse qui influence le retrait volumique et le point de saturation des fibres (Fig. 7), du fait d'un craquage plus poussé des hémicelluloses.

L'espèce a une faible influence sur le retrait volumique et interagit avec la température de pyrolyse (Fig. 8) : le pin sylvestre rétifé est plus stable que le sapin rétifé. Ceci était déjà vrai avant le traitement.

• *Propriétés mécaniques du bois*

Les facteurs influents sont ici : l'espèce, la température de pyrolyse et l'injection d'azote. Le choix de l'espèce est ainsi au moins aussi important que celui de T_p ou de l'injection d'azote. C'est ainsi que le pin sylvestre est nettement plus dégradé que le sapin : on peut soupçonner une différence de comportement entre le cœur et l'aubier du pin provoquant des tensions internes préjudiciables aux résistances mécaniques (Fig. 9).

Augmenter la température de pyrolyse ou injecter tardivement l'azote abaissent les propriétés mécaniques du bois. Il nous faudra injecter l'azote le plus tôt possible pour éviter la dégradation de la lignine.

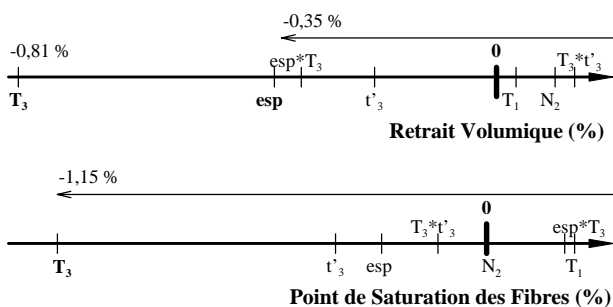


Figure 7. Poids des facteurs sur l'hygroscopie du bois.

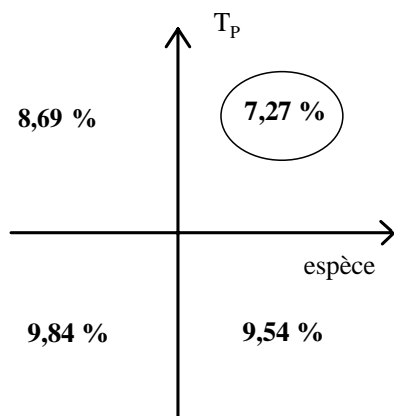


Figure 8. Interaction entre l'espèce et T_p pour le retrait volumique.

Conclusions

Nous avons amélioré notre façon de rendre inerte l'atmosphère du four. Nous commencerons le traitement par un séchage à basse température et nous le finirons par une

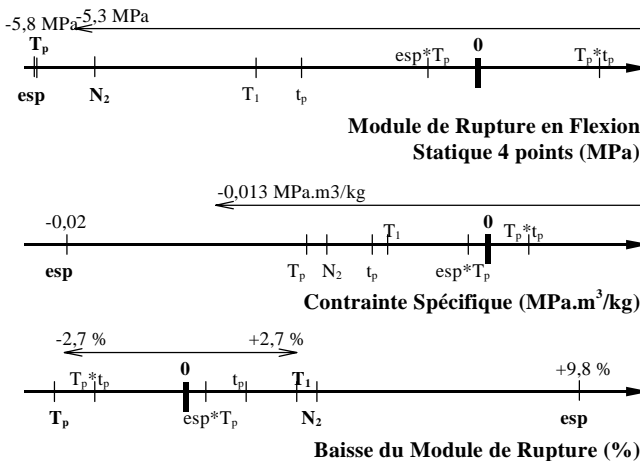
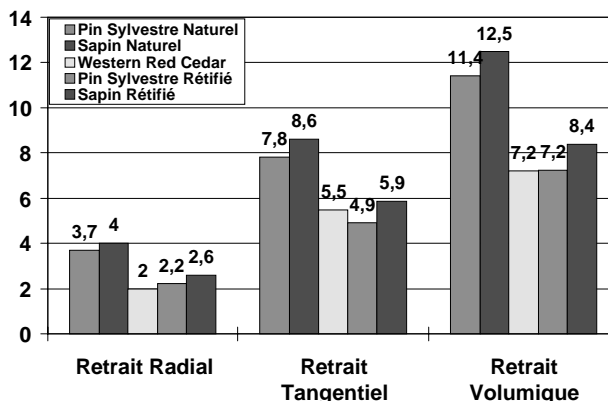


Figure 9. Poids des facteurs sur les résistances mécaniques.

Retraits



Résistances Mécaniques

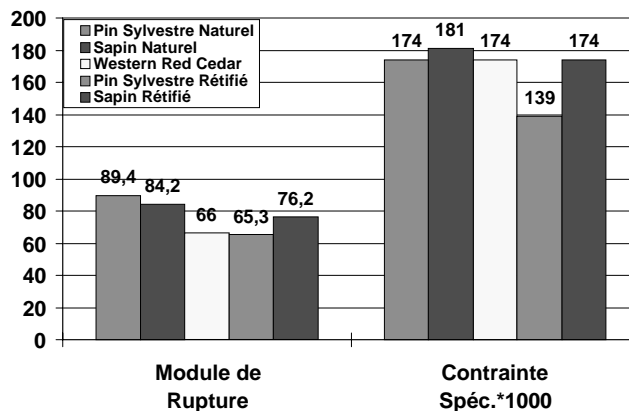


Figure 10. Comparaison Bois Naturel/Western Red Cedar/Bois Rétifé.

pyrolyse à haute température pour améliorer les retraits. Nous disposons d'une marge de manœuvre d'une dizaine de minutes sur la durée de la pyrolyse : des planches pyrolysées un peu plus longtemps que prévu pourront être conservées.

Le pin sylvestre et le sapin réagissent différemment à la réтификаtion. Le pin sera strictement réservé à des usages non structurels, tels que les bardages ou les murs anti-bruits, où ses très bons retraits le rendent compétitif avec le Western Red Cedar (voir Fig. 10). Le sapin rétififié possède à la fois de bonnes résistances mécaniques et des retraits satisfaisants : on pourrait l'employer à terme pour des usages structuraux (charpentes en lamellé-collé, poteaux électriques...).

Le bois rétififié constitue donc une alternative aux bois importés et aux bois traités chimiquement. Il nous reste à présent à adapter et à optimiser le procédé à l'échelle industrielle.

Références

1. Beaudoin, M. L'Ingénieur, mai-juin 1981 ; pp 15-21.
 2. Guyonnet, R; Bourgois, J. Brevet 86 14 138, France.
 3. Gohar, P; Guyonnet, R. Développement du Procédé de Rétificaion du Bois au Stade Industriel, 4th International Symposium on Wood Preservation, Cannes (France), 2-3 février 1998.
 4. Avat, F. Contribution à l'étude des traitements thermiques du bois jusqu'à 300 °C : transformations chimiques et caractérisations physico-chimiques. Thèse de doctorat en science, École des Mines de Saint-Etienne, 1993.
 5. Dirol, D.; Guyonnet, R. The improvement of wood durability by retification process. 24th meeting of the Int. Research Group on Wood Preservation, Orlando (USA), 16-21 mai 1993.
 6. AFNOR, Recueil de Normes Françaises : Bois et Liège, 1988.
 7. Kollman F. F. P.; Côté, W. A. Principles of Wood Science And Technology, Volume I : Solid Wood, Springer-Verlag Berlin, 1968.
 8. Goupy, J. La Méthode des Plans d'Expériences, Paris, Dunod, 1988.
-