



HAL
open science

Using a poly-chromatic X-ray beam by moisture content and microfibril angle determination: theoretical and experimental approaches.

Ricardo Baettig

► To cite this version:

Ricardo Baettig. Using a poly-chromatic X-ray beam by moisture content and microfibril angle determination: theoretical and experimental approaches.. Life Sciences [q-bio]. ENGREF (AgroParisTech), 2005. English. NNT: . pastel-00001424

HAL Id: pastel-00001424

<https://pastel.hal.science/pastel-00001424>

Submitted on 22 Feb 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



École Nationale du Génie Rural
des Eaux et des Forêts



Unité mixte INRA - ENGREF - UHP Nancy 1
(UMR n° 1093)

Thèse

Présentée

Pour l'obtention du grade de

Docteur de l'ENGREF

Spécialité : Sciences forestières et du bois

Par

Ricardo BAETTIG

**EXPLOITATION D'UN RAYONNEMENT X POLY-
ENERGETIQUE POUR LA DETERMINATION DE LA
TENEUR EN EAU ET DE L'ANGLE DE MICROFIBRILLES
DU BOIS : APPROCHE THEORIQUE ET EXPERIMENTALE**

Thèse soutenue publiquement le 18 Juillet 2005
à l'Ecole Nationale du Génie Rural, des Eaux et des Forêts, Centre de Nancy,
devant le jury composé par Messieurs :

Daniel GUITARD
Gilles PEIX

Rapporteur
Rapporteur

Patrick PERRE

Directeur de Thèse

Didier STEMMELEN
André MERLIN

Examineur
Président

à Celinda, ma merveilleuse compagne

à tous qu'ont su rester des enfants

Remerciements

Mes premiers mots de reconnaissance vont vers mon directeur de these, Monsieur Patrick Perré, a qui je remercie de m'avoir accueilli au sein du LERMAB, et d'avoir mis à ma disposition tous les moyens nécessaires à l'aboutissement hereux de ce travail. On n'oublierai pas les qualités scientifiques et humaines desquelles constamment fait preuve en face de ses élèves et proches.

Les membres du jury de thèse messieurs Peix, Guitard, Stemmelen et Merlin ont été d'un grand apport pour l'examen de cette thèse... j'ai apprécié ses questions et critiques. Qu'ils trouvent ici l'expression de mes remerciements les plus sincères.

Je veux remercier les autorités de l'Université de Talca - Chili, grâce à qui j'ai pu regagner la France pendant trois ans et celui qui ont eu confiance à mes capacités. Je veux aussi remercier Francis Devlieger qui a initié mon attrait pour l'étude du bois.

Mes remerciement vont aussi au Directeur du Centre, monsieur Danguy des Déserts, et mesdames Nowak et Knipper, grâce à qui j'ai pu passer des moments de difficultés sans problèmes. Ma reconnaissance aussi à l'ensemble du personnel du LERMAB, un grand merci à Eric, Francois, Francoise, Michel, Joëlle, Phillippe et Jean-Claude.

Quant à mes collegues thésards: Katy, Mika, Clément, Aristide, Mohammed, Saloua, Riad et Vincent : sachez vous n'etes pas oubliés et vous avez tous contribué aux heureux trois années qui viennent de s'écouler. Une mention spéciale pour mon pote Romain Rémond, sa compagne Nadja et sa famille. Je sais que nous continuerons cette belle amitié le long du temps.

Enfin, je tiens à rendre hommage à Celinda, ma femme, qui supporte stoïquement mon mauvais caractère... Heureusement comme elle peut voir au delà, elle connaît de l'enfant drôle et naïf qui je suis et qu'elle fait sortir pendant quelques moments chaque jour...

Table des matières

Chapitre I. Introduction sur l'évaluation non destructive des propriétés du bois

Introduction.....	13
1. L'eau dans l'arbre.....	14
1.1 LE PLAN LIGNEUX.....	14
1.2 COMPOSITION CHIMIQUE DU BOIS.....	16
1.2 L'AFFINITÉ EAU ET BOIS.....	17
1.3 LA TENEUR EN EAU DU BOIS.....	18
1.4 MÉTHODES DE MESURE NON-DESTRUCTIVES DE LA TENEUR EN EAU.....	19
1.4.1 Méthodes électriques.....	19
1.4.2 Méthode par constante diélectrique.....	19
1.4.3 Méthode par spectrométrie des infrarouges.....	20
1.4.4 Méthode par thermalisation des neutrons.....	21
1.4.5 Méthode par résonance magnétique nucléaire.....	21
2. La densité du bois.....	23
2.1 MÉTHODES DE MESURE DE LA DENSITÉ DU BOIS.....	24
2.1.1 Absorptiométrie des radiations ionisantes.....	24
2.1.2 Micro-ondes.....	24
2.1.3 Ondes élastiques.....	25
3. L'angle des microfibrilles (AMF).....	26
3.1 ULTRA STRUCTURE DE LA PAROI CELLULAIRE.....	26
3.2 MÉTHODES DE MESURE POUR L'AMF.....	29
3.2.1 Techniques visuelles.....	29
3.2.2 Diffraction des rayons X.....	30
4. Equipement destiné à l'évaluation non-destructive du bois.....	34
4.1 SYSTÈMES À IMPLANTATION INDUSTRIELLE.....	34
4.2 SYSTÈMES DE LABORATOIRE OU POUR BOIS MIS EN ŒUVRE.....	36
4.3 PROTOTYPES ET DERNIERS DÉVELOPPEMENTS.....	37
5. Synthèse et Conclusions.....	40
Annexe 1.....	42

Chapitre II. Physique des Rayons X

Introduction.....	45
1. Production de rayons X.....	46
1.1 LE TUBE DE RAYONS X.....	46
1.2 CARACTÉRISTIQUES DU FAISCEAU.....	48
1.2.1 Anisotropie du faisceau.....	48
1.2.2 Stabilité du flux.....	49
2. Les interactions des photons X avec la matière.....	50
2.1 LA LOI D'ATTÉNUATION DU RAYONNEMENT.....	50
2.2 ORIGINE DES INTERACTIONS AU NIVEAU ÉLECTRONIQUE.....	54
2.2.1 La diffusion cohérente.....	54
2.2.2 La diffusion incohérente.....	57
2.2.3 L'interaction photoélectrique.....	58
3. Détecteurs pour la spectrométrie de rayons X.....	59
3.1 PRINCIPES DE DÉTECTION ET PROPRIÉTÉS STATISTIQUES DU RAYONNEMENT.....	59
3.2 TRAITEMENT DE SIGNAL ET RÉOLUTION SPECTRALE.....	62
3.3 LES DÉTECTEURS SPECTROMÉTRIQUES.....	63
3.3.1 Détecteurs à gaz.....	63
3.3.2 Détecteurs à semi-conducteur.....	63
3.4 ARTEFACTS DANS LES MESURES.....	64
3.4.1 Empilement des impulsions.....	64

3.4.2 Plateau Compton.....	64
3.4.3 Pic d'échappement.....	65
3.4.4 Recombinaison des charges.....	66
4. Utilisation des rayons X pour l'étude du bois.....	70
4.1 MESURE DE LA DENSITÉ.....	70
4.1.1 Par atténuation du rayonnement.....	70
4.1.2 Par diffusion Compton.....	71
4.2 MESURE DE LA TENEUR EN EAU.....	72
4.2.1 Par atténuation du rayonnement.....	72
4.2.2 Par diffusion cohérente.....	75
4.2.3 Par diffusion Compton.....	77
4.3 MESURE DE L'ANGLE DE MICROFIBRILLES PAR DIFFRACTION DE RAYONS X.....	78
4.3.1 Conditions de diffraction du plan (002).....	78
4.3.2 Conditions de diffraction du plan (040).....	80
4.3.3 Approches pour l'estimation de l'AMF.....	82
5. Conclusion et Perspectives.....	85
ANNEXE 1.....	87
ANNEXE 2.....	88
ANNEXE 3.....	90

Chapitre III. Détermination de la teneur en eau du bois par atténuation des rayons X : Application au séchage des avivés

Introduction.....	93
1. Description de la méthode.....	95
1.1 FORMULATION PHYSIQUE.....	95
1.2 CALCULS NUMÉRIQUES.....	96
2. Démarche expérimentale.....	97
2.1 LA CELLULE DE SÉCHAGE.....	97
2.2 DISPOSITIF DE RAYONS X.....	98
2.3 DÉTECTEUR ET TRAITEMENT DE DONNÉES.....	98
2.4 FENÊTRES POUR LA TRAVERSÉE DU FAISCEAU X.....	99
2.5 SYSTÈME DE DÉPLACEMENT ET DE PROTECTION CONTRE LE RAYONNEMENT.....	100
2.6 LA COLLIMATION.....	101
2.7 DÉROULEMENT AUTOMATISÉ DE L'ACQUISITION.....	101
2.7.1 Recherche de bords de l'échantillon.....	102
2.7.2 Mesure de l'intensité du rayonnement incident.....	102
2.7.3 Balayage de l'épaisseur de l'échantillon.....	102
2.8 OBTENTION DE MESURES DESTRUCTIVES.....	104
2.9 LE MATÉRIEL VÉGÉTAL ET LES CONDITIONS D'OPÉRATION.....	105
2.9.1 Matériel végétal.....	105
2.9.2 Conditions d'opération.....	107
2.10 CHOIX DE L'INTENSITÉ ET DE LA DURETÉ DU RAYONNEMENT.....	107
3. Résultats.....	109
3.1 DURÉE DU SÉCHAGE.....	109
3.2 CALCUL EXPÉRIMENTAL DES COEFFICIENTS D'ATTÉNUATION.....	109
3.3 STABILITÉ DE L'ÉMISSION.....	110
3.4 ÉVOLUTION DES FONCTIONS I ET T , OBTENTION DES MINIMUMS.....	111
3.5 PROFILS DE TRANSMISSION ET PROFILS D'HUMIDITÉ AU COURS DU TEMPS.....	114
4. Discussion des résultats.....	117
4.1 SOURCES STATISTIQUES D'IMPRÉCISION.....	117
4.2 SOURCES NON STATISTIQUES D'IMPRÉCISION.....	118
4.2.1 Perturbation thermique.....	118
4.2.2 Perturbation due au retrait du bois.....	119
5. Conclusion et Perspectives.....	120
ANNEXE 1.....	121
ANNEXE 2.....	122

Chapitre IV. Détermination simultanée de la teneur en eau et de la densité du bois par atténuation d'un rayonnement X poly-énergétique

Introduction.....	125
1. Méthode de détermination simultanée des phases.....	126
1.1 EQUATIONS FONDAMENTALES.....	126
1.2 CALCULS NUMÉRIQUES.....	127
2. Détermination des conditions optimales de mesure.....	129
2.1 DESCRIPTION DE LA MÉTHODE STOCHASTIQUE.....	129
2.1.1 Variabilité de l'émission.....	129
2.1.2 Variabilité des coefficients d'atténuation.....	130
2.1.3 Validation de la méthode.....	131
2.2 EXPLOITATION DE LA MÉTHODE STOCHASTIQUE.....	133
2.2.1 Le rapport signal/bruit.....	133
2.2.2 Calcul de la précision par méthode stochastique.....	137
2.2.3 Dégradation d'un spectre bi-énergétique idéal.....	139
a) Largeur de raies.....	139
b) Equilibrage des deux raies.....	139
2.3 UTILISATION DES SPECTRES POLY-ÉNERGÉTIQUES.....	141
2.3.1 Simulation de spectres continus.....	141
2.3.2 Simulation de la durée d'acquisition.....	143
2.4 VARIABILITÉ SUR LES COEFFICIENTS D'ATTÉNUATION.....	144
2.4.1 Incertitude sur et provenant de la constitution chimique.....	144
2.4.2 Calcul de avec variabilité sur	145
3. Démarche expérimentale.....	147
3.1 DESCRIPTION DU MATÉRIEL EXPÉRIMENTAL.....	147
3.1.1 La source de rayons X.....	147
3.1.2 Collimation et détection du faisceau.....	147
3.2 CONDITIONS DE MESURE RETENUES.....	148
3.2.1 Configuration de l'échantillon.....	148
3.2.2 Dureté de spectre.....	150
3.2.3 Déroulement de l'acquisition.....	151
4. Résultats expérimentaux.....	152
4.1 ALLURE DES SPECTRES.....	152
4.2 CALCUL DE MASSES SURFACIQUES.....	154
4.3 IDENTIFICATION DE L'ÉPAISSEUR DES MATÉRIAUX.....	155
4.4 IDENTIFICATION UTILISANT LES COEFFICIENTS D'ATTÉNUATION EXPÉRIMENTAUX.....	157
5. Conclusion et Perspectives.....	160
ANNEXE 1.....	161
ANNEXE 2.....	163

Chapitre V. Détermination de l'angle des microfibrilles du bois par diffraction de rayons X

Introduction.....	167
1. Détermination de l'AMF par l'approche classique de diffraction.....	169
1.1 L'INFLUENCE DE LA FORME DE LA SECTION TRANSVERSALE DES CELLULES.....	169
1.3 CHANGEMENT DE L'ANGLE DE ROTATION DES CELLULES.....	173
1.4 CHANGEMENT DE L'AMF.....	174
2. La variance de l'AMF.....	175
2.1 EFFET DE LA VARIANCE DE L'AMF SUR LA VARIANCE DU POINT DE DIFFRACTION.....	175
2.2 CHANGEMENT DES PROFILS DE DIFFRACTION.....	176
2.3 ADOUCISSEMENT DU PROFIL DE DIFFRACTION.....	177
3. Démarche expérimentale.....	179
3.1 DESCRIPTION DE NOTRE APPROCHE POUR L'ESTIMATION DE L'AMF.....	179
3.2 DESCRIPTION DU MATÉRIEL EXPÉRIMENTAL.....	181
3.3 CONDITIONS DE MESURE.....	182
3.3.1 Description des échantillons.....	182
3.3.2 Intensité du faisceau et collimation.....	183

3.3.3 Déroulement de l'acquisition.....	184
3.3.4 Microscopie électronique.....	184
4. Résultats.....	186
4.1 PROFILS DE DIFFRACTION EXPÉRIMENTAUX.....	186
4.1.1 Bois de compression.....	186
4.1.2 Bois initial.....	187
4.1.3 Bois final.....	188
4.2 MAILLAGES ET ORIENTATIONS DES PAROIS CELLULAIRES.....	189
4.2.1 Bois de compression.....	190
4.2.2 Bois initial.....	190
4.2.3 Bois final.....	190
4.3 CONFRONTATION DE RÉSULTATS ET CALCUL DE L'AMF.....	193
5. Conclusions et perspectives.....	195

Chapitre VI. Approche pour la détermination de la teneur en eau du bois par diffusion cohérente de rayons X

Introduction.....	199
1. Mesures préliminaires de diffusion dans le bois humide.....	200
1.1 DESCRIPTION DU MATÉRIEL EXPÉRIMENTAL.....	200
1.2 DIFFUSION POUR DES MATÉRIAUX PROCHES DU BOIS.....	201
1.3 INTENSITÉ DE DIFFUSION À DIFFÉRENTES TENEURS EN EAU.....	202
2. Estimation de l'intensité de diffusion de l'eau.....	205
2.1 APPROCHE THÉORIQUE.....	205
2.2 EFFET LIÉ À LA POLY-ÉNERGIE DU FAISCEAU.....	208
2.3 APPLICATION DU MODÈLE.....	208
3. Mesure expérimentale de l'intensité de diffusion.....	210
3.1 DESCRIPTION DU MATÉRIEL EXPÉRIMENTAL.....	210
3.2 DÉROULEMENT AUTOMATIQUE DE L'ACQUISITION.....	211
3.3 CONDITIONS DE MESURE.....	212
4. Résultats.....	215
4.1 PRÉCISION DE LA PESÉE.....	215
4.2 VÉRIFICATION DE L'INTERCHANGEABILITÉ DES DEUX CAPTEURS.....	217
4.3 OBTENTION DE POUR UN ÉCHANTILLON D'EAU.....	218
4.4 OBTENTION DE EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU	221
4.4.1 Evolution des conditions de l'ambiante.....	221
4.4.2 Evolution de la masse de l'échantillon.....	221
4.4.3 Evolution de l'intensité transmise et diffusée.....	223
4.5 OBTENTION DE THÉORIQUE POUR L'ÉCHANTILLON DE BOIS HUMIDE.....	225
4.6 INTENSITÉ DU BRUIT DE FOND.....	227
4.7 EXPLORATION DE LA VARIANCE ANGULAIRE.....	228
5. Conclusion et Perspectives.....	230
Annexe 1.....	231
Annexe 2.....	232
Conclusion générale.....	235
Nomenclature.....	240
Bibliographie.....	241

Chapitre I

Introduction sur l'évaluation non destructive des propriétés du bois

Introduction

Aujourd'hui, la connaissance du matériau bois bénéficie du développement des techniques d'évaluation non destructive. En effet, plusieurs méthodes ont été créées pour accéder à la structure interne des arbres vivants, billons et avivés de façon non destructive, c'est-à-dire, dans l'objectif de « voir sans détruire ».

Nous pouvons classer les méthodes d'évaluation non destructive selon de multiples critères, bien différents. Par exemple, nous pouvons classer les méthodes selon qu'elles sont avec ou sans contact ; selon la propriété physique à mesurer (teneur en eau, densité, etc.) ; selon le type de phénomène physique exploité (rayons X, ultrasons, etc.), selon le type de bois (bois d'œuvre, arbre sur pied, bois scié, etc.). Par ailleurs, la structure complexe et hiérarchique du bois, permet d'étudier ses propriétés à différentes échelles.

Les méthodes d'évaluation non destructive font appel à plusieurs technologies qui ont été développées récemment durant le XX^{ème} siècle telles que l'électronique, le traitement d'images, l'informatique, la physique des particules, etc. Par ailleurs, pour appliquer ces méthodes à un objet d'étude biologique et complexe tel que le bois, il est nécessaire de connaître de façon approfondie ses propriétés.

Au cours de ce premier chapitre, nous décrirons les principales propriétés du bois en fonction de ses spécificités anatomiques et chimiques. Parallèlement, nous allons décrire, en nous appuyant sur des références bibliographiques, les principales méthodes non destructives qui sont utilisées, ou qui peuvent être envisagées, pour évaluer ces propriétés.

A la fin de ce chapitre, nous allons décrire succinctement des équipements récents destinés à évaluer les propriétés du bois, pour l'implantation industrielle mais aussi pour être utilisés au niveau du laboratoire.

1. L'eau dans l'arbre

1.1 Le plan ligneux

Dans un arbre sur pied, presque la totalité des cellules du bois sont mortes. L'exception est donnée par les cellules constituant des tissus spécifiques : les cellules mères de l'assise génératrice libéro-ligneuse (cambium) et quelques autres cellules à fonction spécifique. Le cambium assure l'accroissement diamétral de l'arbre au moyen d'une succession de divisions cellulaires dans la direction radiale ou périclinale. Une des cellules filles entame la formation d'une paroi cellulaire ligno-cellulosique avant de mourir.

Les divisions cellulaires périclinales se réalisent tant vers l'intérieur que vers l'extérieur du cambium. Au cours de cette phase, chaque cellule va prendre son rôle dans la structure de l'arbre en se différenciant en cellules à fonction définie. Le tissu interne constitue le xylème, lequel est impliqué dans le transport ascendant de la sève brute (aubier) et dans le soutien mécanique de l'arbre (duramen). Le tissu externe, ou phloème, est spécialisé dans le transport descendant de la sève élaborée.

Le tissu formé présente une morphologie systématique connue comme « plan ligneux » lequel est constant pour une espèce donnée, est généralisable pour un groupe d'espèces et présente des analogies avec les espèces voisines (Keller, 1994). Le plan ligneux présente un caractère anisotrope avec 3 directions perpendiculaires d'orientation de la matière. On définit la direction longitudinale comme la parallèle à l'axe de la tige (ou de la branche), la direction radiale comme celle qui provient de la moelle, et la direction tangentielle selon la tangente aux accroissements annuels (Fig. 1).

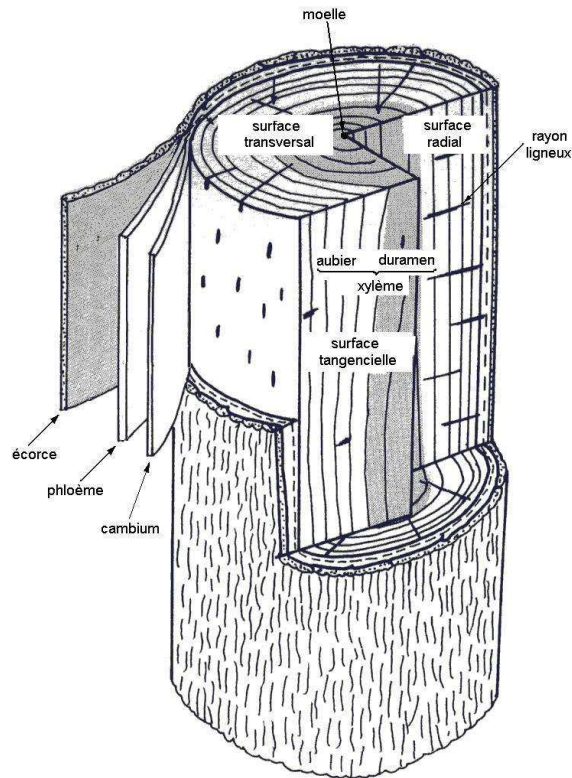


Figure 1. Vu d'une tige avec ses tissus principaux. (Adapté d'après Higuchi, 1997).

Chez les résineux, le tissu formant le bois est simple ; la sève circule par les trachéides qui s'occupent en même temps du soutien mécanique de l'arbre. En suivant les périodes saisonnières, les cellules récemment différenciés du xylème génèrent des parois cellulaires plus fines pendant le printemps et plus épaisses pendant l'été. Cette variation est une des causes de l'apparence des accroissements annuels ou cernes de croissance.

Chez les feuillus, la sève circule à travers des cellules au lumen pouvant atteindre jusqu'à plusieurs centaines de microns appelées éléments de vaisseaux, tandis que le soutien mécanique est assuré par des cellules avec un lumen fin : les fibres (Fig. 2).

Chez les résineux comme chez le feuillus les cellules sont fortement connectées entre elles au moyen de nombreux trous dans ses parois cellulaires. Ainsi, le bois est formé par des capillaires interconnectés, qui permettent la montée de la sève brute, due à l'aspiration générée par l'évapo-transpiration du feuillage.

Bien que le tissu du xylème et le tissu de phloème soient orientés selon la direction longitudinale, il existe des ensembles cellulaires orientés selon la direction radiale. Ils

correspondent aux rayons ligneux, lesquelles s'occupent du stockage et du flux de sève élaborée dans la direction radial.

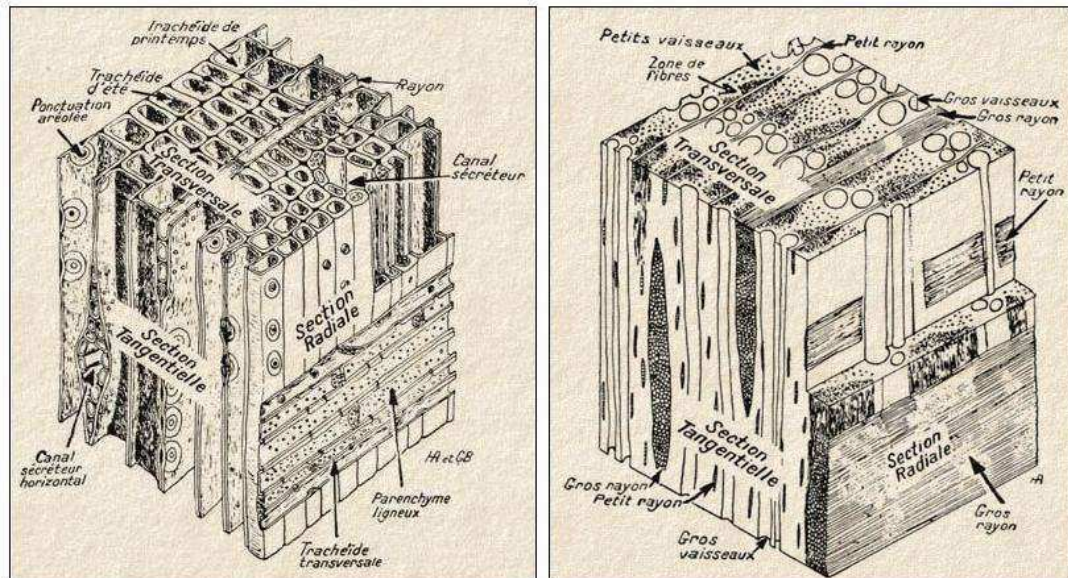


Figure 2. Plan ligneux d'une essence résineux et d'une essence feuillue. (Bouet et Humbert, 2005)

1.2 Composition chimique du bois

La paroi cellulaire est composée chimiquement par 3 substances structurales : cellulose, hémicelluloses et lignine.

La cellulose correspond à un polymère linéaire de molécules de D-glucose connectées par des liaisons β -1,4 glucosidiques (Fig. 3). Dans le bois, le degré de polymérisation de la cellulose, c'est à dire, la quantité moyenne d'unités de glucose enchaînées, atteint les 10.000 unités (Higuchi, 1997). Comme la longueur d'une molécule de glucose est de 0,5 nm, la longueur totale d'une molécule de cellulose atteint 5 μ m environ.

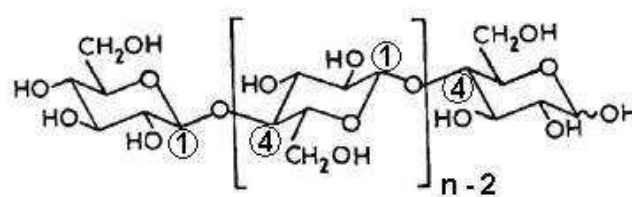


Figure 3. Chaîne linéaire de cellulose avec la liaison β -1,4 glucosidique

Les hémicelluloses sont des polysaccharides formés par des monomères hétérogènes (pentoses ou hexoses), ils sont plus courts que la cellulose et hautement ramifiés. La lignine, quant à elle, est une association hétérogène de molécules de nature phénolique qui forme une structure supra moléculaire tridimensionnelle.

Le tableau 1 présente les proportions des composants chimiques dans le bois. Ces proportions varient peu pour toutes les essences. Néanmoins, dans le bois existent des substances extractibles de différente nature chimique telles que tanins, glycérides, cendres, etc., qui dépassent rarement 5% du poids du bois.

Tableau I.1. Composition chimique du bois selon Browning (1963) cité par Lindgren (1992).

Composant	Formule	Proportions dans le bois
Cellulose	$C_6H_{12}O_6$	30% à 50%
Hemicelluloses	$C_{5,9}H_{11,8}O_{5,8}$	15% à 35%
Lignine	$C_{10}H_{13}O_2$	15% à 30%

1.2 L'affinité eau et bois

La paroi cellulaire est formée par la superposition successive d'un grand nombre de chaînes cellulosiques orientées de façon parallèle.

Au niveau intermoléculaire, des liaisons Hydrogène permettent aux chaînes cellulosiques d'adhérer les unes par rapport aux autres, en restructurant des unités progressivement plus importantes avec un caractère cristallin. Ce même phénomène peut expliquer l'affinité eau-bois : des liaisons Hydrogène se forment entre les atomes H des chaînes cellulosiques et les molécules polaires d'eau.

La présence d'eau dans le bois est indispensable à la vie de l'arbre. Dans l'arbre vivant, les lumens cellulaires sont presque toujours remplis d'eau. Des flux de sève brute provenant du sol et de sève élaborée provenant du houppier sont inhérents à sa physiologie. Une fois l'arbre abattu, le bois en contact avec l'atmosphère laisse partir graduellement l'eau, en retrouvant un nouvel état d'équilibre qui est caractérisé par une teneur en eau nettement inférieure.

Dans le bois vert, une partie de l'eau totale se trouve dans les lumens cellulaires, dit « eau libre », tandis qu'une autre partie se trouve absorbée dans les parois cellulaires, dites « eau liée ». L'absorption d'eau par les parois cellulaires est produite plus facilement dans des zones où les chaînes cellulosiques sont plus détachées ou zones amorphes. Au niveau sub-microscopique, l'entrée successive des nouvelles molécules d'eau se traduit par un détachement et un éloignement entre des arrangements cellulosiques. Cet éloignement, au niveau microscopique est vu comme le gonflement des parois cellulaires et au niveau macroscopique comme une augmentation dimensionnelle. A l'inverse, le départ des molécules d'eau produit un rapprochement des arrangements cellulosiques. Ce phénomène est appelé le retrait du bois.

Lorsque le bois sèche, l'eau libre migre tout d'abord vers la surface d'échange sans produire aucun changement dimensionnel dans le bois ; sauf des cas particuliers, où la dépression capillaire peut amener la paroi cellulaire à s'écraser sur elle-même, phénomène appelé « collapse ». La perte d'eau libre continue jusqu'à ce qu'il ne reste que de l'eau liée dans les parois ; état alors appelé « point de saturation des fibres » ou PSF. A partir de ce moment, la perte d'eau s'accompagne du retrait.

1.3 La teneur en eau du bois

Nous définissons la teneur en eau comme la proportion en masse d'eau (libre et liée) par rapport à la masse anhydre de l'échantillon. Pour des conditions atmosphériques similaires, toutes les essences tendent vers une teneur en eau à peu près similaire (teneur en eau d'équilibre). Cette homogénéité s'explique par la nature chimique et structurale des parois cellulaires qui est fort similaire pour toutes les espèces forestières. La teneur en eau d'équilibre se trouve en dessous du PSF quelles que soient les conditions de température et d'humidité relative de l'ambiance.

Cela dit, la teneur en eau d'un échantillon peut être mesurée par simple différence de masse entre son état humide et l'état anhydre. Bien que cette méthode soit très précise elle reste une méthode destructive où l'échantillon ne pourra être réutilisé. C'est la raison pour laquelle la mesure de la teneur en eau de façon rapide, non-destructive et sans contact constitue un enjeu important pour la science et la technologie utilisant le matériau bois.

1.4 Méthodes de mesure non-destructives de la teneur en eau

1.4.1 Méthodes électriques

Contrairement à l'eau, le bois anhydre est un isolant électrique presque parfait. Ainsi la mesure de la résistivité électrique du bois apporte une estimation de sa teneur en eau. Il existe une relation linéaire entre le logarithme de la résistance électrique et le logarithme de la teneur en eau du bois (Carll et Ten Wolde, 1996). En même temps, il existe une dépendance entre la résistivité électrique et la température de l'échantillon ; en conséquence, il est nécessaire d'une correction par rapport à la température pour bien estimer la teneur en eau du bois.

Cette technique peut être utilisée typiquement pour une teneur en eau comprise entre 6% et le PSF (autour de 30%). Au-dessous de 6% la résistance électrique du bois est trop haute pour être mesurée avec un appareillage classique : à l'état anhydre la résistivité du bois atteint 10^{14} à $10^{16} \Omega\text{m}$. A l'inverse, au-delà du domaine hygroscopique la mesure de la résistivité électrique n'est pas précise car elle dépend de la nature de la sève.

Du fait de la simplicité de cette méthode, elle est la plus répandue pour des mesures dans le domaine hygroscopique. Le système de mesure est très simple et sa fabrication a été décrite par plusieurs auteurs (Liftig, 1985 ; Carll et Ten Wolde, 1996 ; Dai et Ahmet, 2001). Malheureusement, la nécessité d'ancrer des électrodes dans l'échantillon et la plage limitée dans laquelle la mesure est précise, constituent des grandes limitations à l'utilisation de cette méthode.

1.4.2 Méthode par constante diélectrique

Grâce au caractère isolant du matériau bois, il est possible de mesurer sa constante diélectrique pour estimer la teneur en eau. Cette méthode est presque autant répandue que la méthode par résistivité électrique, pour mesurer la teneur en eau. Par ailleurs, elle est avantageuse par rapport à la première, parce qu'elle peut être conduite sans contact. La méthode utilise des ondes électromagnétiques à haute fréquence ou dans la plage des micro-ondes qui sont capables d'interagir avec les propriétés diélectriques des matériaux.

Dans le signal transmis ou réfléchi, trois paramètres sont exploités couramment : l'atténuation, qui donne une idée de la densité globale du milieu ; le déphasage, qui est lié à la réduction de la vitesse de propagation des ondes dans le milieu, et la dépolarisation, qui est liée à l'anisotropie de la constante diélectrique dans le milieu.

Malheureusement les corrélations entre les propriétés diélectriques des matériaux et les 3 paramètres décrits sont d'une complexité extrême. Les méthodes empiriques, statistiques ou d'intelligence artificielle sont nécessaires pour exploiter ces paramètres. (James *et al.*, 1985 ; Choffel, 1995 ; Johansson *et al.*, 2003 ; Sahin et Ay, 2004).

En raison de la faible fréquence électromagnétique des micro-ondes, elles sont inoffensives à l'usage. Par contre, cette caractéristique avantageuse constitue aussi l'une de ces principales limitations : la résolution spatiale des mesures est grossière, parce qu'elles sont constituées des longueurs d'ondes qui varient entre 1 cm et 1 m (pour 30 GHz et 0,3 GHz respectivement).

1.4.3 Méthode par spectrométrie des infrarouges

La spectrométrie en réflexion diffuse dans le proche infrarouge (SPIR) est une méthode sans contact qui consiste à mesurer le rayonnement réfléchi par l'échantillon. La méthode SPIR peut être utilisée pour prédire les caractéristiques qui dépendent étroitement de la constitution chimique du bois (Baillères *et al.*, 2002). Spécifiquement, la mesure de la teneur en eau du bois est basée sur le fait que les molécules d'eau absorbent la lumière infrarouge de façon sélective à 3 longueurs d'onde différentes : 2662, 2738 et 6270 nm (Healy, 2003). Cependant, en réflexion ou en transmission, la méthode par spectrométrie des infrarouges peut être considérée comme superficielle, à cause de la forte atténuation de la lumière. Par ailleurs, la méthode est affectée par l'état de surface de l'échantillon.

1.4.4 Méthode par thermalisation des neutrons

Une méthode de mesure de la teneur en eau valable au-dessus du PSF est la méthode de thermalisation des neutrons. Elle consiste à introduire dans un échantillon de bois ou au milieu d'une pile de bois, une source de neutrons hautement énergétiques et un capteur de neutrons faiblement énergétiques. Les neutrons énergétiques sont issus d'un bombardement par des rayons Alpha d'une cible à neutrons faiblement liés (Béryllium) au moyen d'une source radioactive. Les molécules d'eau autour de la source engendrent des diffusions successives de neutrons qui perdent une partie de leur énergie cinétique. Au bout d'un certain temps, un nuage de neutrons dit « lents » se forme autour de la source (Fig. 4). La densité de ce nuage est mesuré par le capteur et est directement liée à la concentration des molécules d'eau. Cette méthode est couramment utilisée pour la mesure de la teneur en eau des sols et elle a été utilisée par Rosenberg *et al.* (2001), pour la mesure de la teneur en eau moyenne dans une pile de bois au cours du séchage.

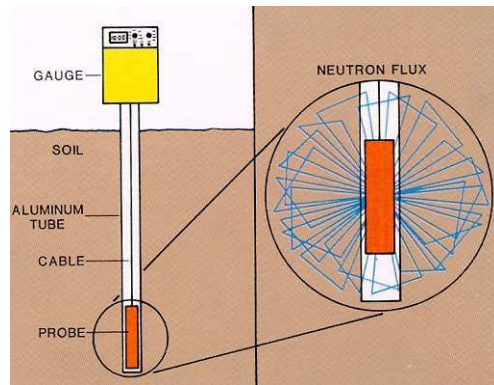


Figure 4. Méthode par thermalisation des neutrons (Risinger, 2004)

1.4.5 Méthode par résonance magnétique nucléaire

La méthode de résonance magnétique nucléaire (RMN) consiste en quelques mots à soumettre un échantillon à un champ magnétique B_0 suffisamment fort, pour aligner les moments magnétiques (spin) de ses noyaux atomiques. Ce champ magnétique est balayé par un train d'impulsions B_1 de radio fréquence à l'aide d'une bobine spécialement adaptée, d'où la notion de RMN impulsionnelle (Fig. 5). Ces impulsions doivent contenir les fréquences de résonance des spins des atomes étudiés dans l'échantillon. Lorsque le train d'ondes électromagnétiques est interrompu, les noyaux reprennent leurs dispositions aléatoires (relaxation) en libérant de l'énergie électromagnétique qui est détecté par une antenne. Une analyse du signal amplifié permettra de mettre en évidence les fréquences de résonance, ainsi que l'amplitude, la phase et l'atténuation du signal (Vion-Dury, 2002).

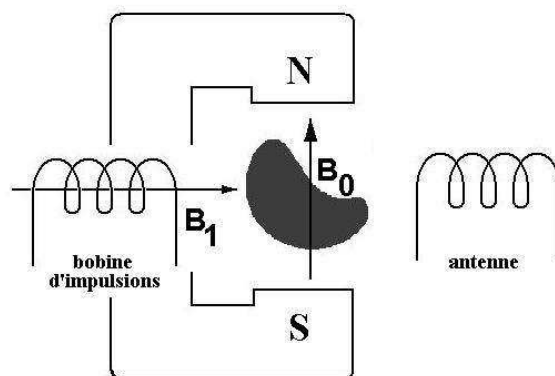


Figure 5. Schématic de la mesure par Résonance Magnétique.

La fréquence de résonance f_0 d'un moment magnétique nucléaire est proportionnelle à l'intensité B_0 du champ magnétique environnant. Cette proportionnalité est exprimée par la relation de Larmor :

$$f_0 = B_0 \gamma / 2\pi$$

La constante γ est appelée « rapport gyromagnétique » et dépend de la nature du noyau étudié. La relation de Larmor permet de déduire que, pour un champ de 1 Tesla, la fréquence de résonance des noyaux d'Hydrogène est égale à 42,57 MHz ($1,76 \times 10^{-7}$ eV). La magnitude de la fréquence de résonance pour un noyau donné varie selon son environnement chimique, c'est la notion de « déplacement chimique ». La RMN cherche à distinguer les différents protons d'une structure moléculaire à travers la mise en évidence de ces déplacements chimiques.

D'autre part, l'analyse de la période d'atténuation du signal (notion de « temps de relaxation »), donne aussi des indications sur la structure moléculaire du matériau. Cela dit, il semble évident que la RMN constitue un outil précieux pour l'analyse des structures chimiques. Pour le cas du bois humide, le temps de relaxation permet de distinguer l'eau liée de l'eau libre (Rosenkilde et Glover, 2002 ; Bucur, 2003).

La principale complexité d'un système de RMN est basée sur la nécessité d'avoir un aimant très puissant créant un champ magnétique de quelques Tesla (1 Tesla est équivalent à 20000 fois le champ magnétique terrestre). Il est en effet difficile de créer à la fois des électroaimants puissants et d'avoir une faible perte d'énergie par effet Joule. D'où la nécessité d'utiliser des solénoïdes d'alliages à propriétés supraconductrices maintenus au voisinage de 0 K à l'aide de liquides cryogéniques.

2. La densité du bois

La composition chimique du bois et sa structure interne au niveau des arrangements moléculaires et supra-moléculaires sont à peu près toujours les mêmes pour les différentes espèces forestières. Cette homogénéité se traduit au niveau de la densité de la paroi cellulaire, qui selon Polge (1966) est à peu près constante et égale à $1,53 \text{ g cm}^{-3}$. Ainsi les grandes

différences de densité observée d'une espèce à l'autre ou dans un accroissement annuel, peuvent être expliquées par la variation de l'épaisseur des parois et/ou de la taille transversale des cellules.

La densité d'un échantillon du bois dépend des conditions hygrothermiques de l'air ambiant car la masse et le volume de l'échantillon sont altérés par l'absorption d'eau. Cependant, deux invariants peuvent être distingués : la masse à l'état anhydre (m_o) et le volume à l'état saturé (V_s). D'où provient le concept d'infradensité du bois, calculée comme :

$$\rho = m_o / V_s$$

L'infradensité permet d'établir des comparaisons entre échantillons issus d'un même arbre, d'une même essence ou d'essences différentes.

Au niveau des laboratoires, la densité globale d'un échantillon de bois est souvent mesuré par simple pesée avec le volume mesuré au moyen de la poussée d'Archimède. Lorsque ces manipulations ne sont pas envisageables, des méthodes non destructives sont utilisés.

2.1 Méthodes de mesure de la densité du bois

2.1.1 Absorptiométrie des radiations ionisantes

La mesure de l'atténuation d'un faisceau X ou γ est liée à la densité de l'échantillon irradié lorsque sa teneur en eau est homogène et constante. Le calibrage de la méthode nécessite des coefficients d'atténuation expérimentaux ou théoriques qui sont dépendants de la composition atomique du matériau.

Cette méthode a été très étudié pour l'obtention de la densité locale des échantillons de bois pendant les années 60 à 80 (Polge, 1966 ; Heger *et al.*, 1974 ; Steiner *et al.*, 1978 ; Cown et Clement, 1983 ; Hoag et McKimmy, 1988 ; Walker et Dodd, 1988 ; Liu *et al.*, 1988 ; Moschler et Dougal, 1988). Aujourd'hui l'absorptiométrie est devenue presque une technique de routine pour évaluer la densité locale du bois.

En utilisant des capteurs adaptés, la résolution spatiale de la mesure de la densité peut être excellente. Pour le bois, lorsque cette résolution spatiale atteint quelques micromètres, nous parlons de profil de microdensité ; qui peut par exemple, révéler des différences de densité des tissus à l'échelle d'un accroissement annuel.

Des singularités et défauts du bois, tels que : nœuds, poches de résine, fentes, vides, pourriture, etc. peuvent être détectés grâce à leurs différences de densité par rapport au bois environnant.

2.1.2 Micro-ondes

De la même façon que les radiations ionisantes, la mesure de l'atténuation des micro-ondes apporte des informations liées à la densité du milieu. Une information similaire est donnée par le déphasage, généré par la perte de vitesse de propagation des ondes électromagnétiques dans le milieu (Choffel, 1995).

2.1.3 Ondes élastiques

Bien que les ondes élastiques tels que les ultrasons ne donnent pas d'information directe sur la densité, elles peuvent permettre la détection des singularités grâce à des différences d'impédance acoustique. L'impédance acoustique (Z) d'un milieu correspond au produit de la densité et de la vitesse de propagation des sons (ρV). Il faut signaler que le bois, en tant que matériau anisotrope, présente un vecteur d'impédances acoustiques, où le comportement dans la direction longitudinale est autour de 10 fois plus importante que ceux des directions transversales.

La proportion réfléchiée dans l'interface entre deux milieux avec impédances acoustiques différentes est calculée comme :

$$R = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1}$$

Cette équation montre que plus les impédances des milieux couplés sont différentes, plus la magnitude de la réflexion acoustique sera importante. Au niveau opérationnel, un ralentissement de l'onde ultrasonore, une atténuation trop importante ou un écho (réflexion acoustique) sont des évidences des discontinuités internes ou changements de densité ou orientation du fil, comme celles produites par les nœuds, la pente de fil ou la pourriture.

La production des ondes élastiques est réalisée par simple choc mécanique ou plus couramment au moyen de transducteurs piézoélectriques (besoin de contact). La détection est réalisée en transmission ou en réflexion à l'aide du même type de transducteurs et la plage de fréquence la plus utilisée se situe entre 50 kHz et 1 MHz (Bucur, 2003).

3. L'angle des microfibrilles (AMF)

3.1 Ultra structure de la paroi cellulaire

Les molécules de cellulose sont bio-synthétisées sous la forme d'un paquet de chaînes appelé « fibrille élémentaire » laquelle serait composé de 36 chaînes moléculaires parallèles (Fig. 6a). Cette structure aurait $6,5 \times 7,6$ nm en section transversale mais une longueur 10.000 à 100.000 fois plus important. La fibrille élémentaire présente plusieurs familles de plans de symétrie, où les deux principaux sont codés selon les indices de Miller comme : (040) et (002) (Fig. 6b).

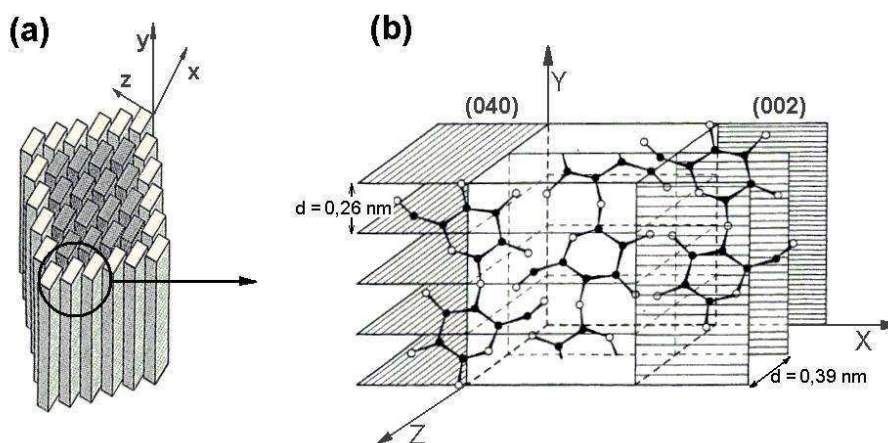


Figure 6. Schématisation de la fibrille élémentaire et ses principaux plans de symétrie (Adapté d'après Newman, 1997 et Cave, 1997a).

La rigidité de la fibrille élémentaire est élevée, des études indiqueraient un module d'élasticité longitudinale autour de 120 GPa (Newman, 1997). Les molécules de cellulose se présentent associées étroitement aux hémicelluloses et à la lignine. Des études montrent que la cellulose est recouverte par une matrice d'hémicellulose, laquelle serait à la fois, entourée d'une matrice de lignine et d'hémicellulose (Ruel *et al.*, 1978 cités par Higuchi, 1997) (Fig. 7). Compte tenu de ce modèle, nous pouvons assimiler la structure de la paroi au béton armé : les microfibrilles jouent le rôle de l'acier et la lignine et hémicellulose jouent le rôle du ciment. Il faut noter que les fibrilles élémentaires ne présentent pas une orientation préférentielle autour de l'axe de la microfibrille. En d'autres mots, la microfibrille présente une symétrie du type « fibrillaire » (Prud'homme et Noah, 1975).

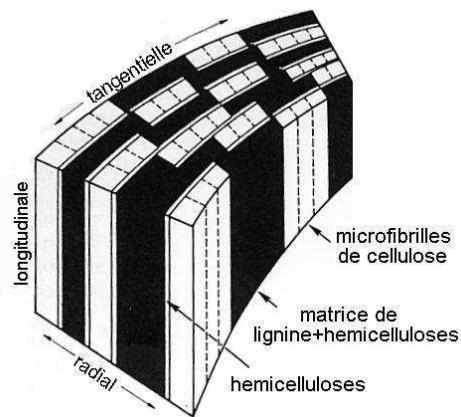


Figure 7. Association entre cellulose, hemicellulose et lignine dans la paroi cellulaire (Siau, 1984).

Autour de la paroi cellulaire, les microfibrilles sont disposées en spirales qui forment des lamelles minces. Ces lamelles ont été déposées successivement, les plus externes avant les plus internes. La paroi primaire (P) correspond à la couche périphérique, elle adhère aux cellules voisines par l'intermédiaire de la lamelle mitoyenne, membrane pectique très riche en lignine¹. La paroi secondaire correspond à la couche interne, laquelle est divisée en 3 sous-couches nommées S1, S2 et S3 (Fig. 8). Dans la couche S1, les microfibrilles alternent leur orientation : dans une lamelle elles tournent de façon dextrogyre (Z) et dans la suivante, d'une façon lévogyre (S). L'angle formé par ces spirales et l'axe de la cellule atteint 60° à 80°. Dans la couche S2, les spirales des microfibrilles s'inclinent relativement peu par rapport à l'axe de la cellule (5° à 30°). La sub-couche centrale S2 constitue 75% à 85% de l'épaisseur totale de la paroi. La couche S3 est plus hétérogène dans ces caractéristiques, mais en règle générale elle est relativement mince et l'inclinaison des microfibrilles atteint de 60° à 90° (Keller, 1994).

¹ Par des techniques de macération ou d'attaque chimique, cette région est détruite et les cellules se séparent les unes des autres : c'est la base de la fabrication de la pâte à papier.

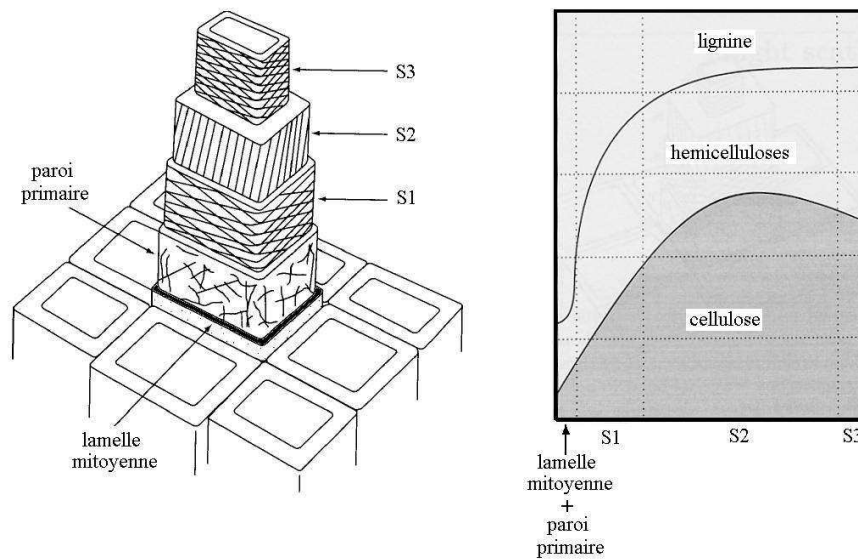


Figure 8. Les couches de la paroi cellulaire et sa distribution des composants chimiques.

L'inclinaison des microfibrilles ou angle des microfibrilles (AMF, symbolisé couramment comme μ) dans la sous-couche S2 joue un rôle essentiel dans les propriétés physiques du matériau du fait que cette couche forme la masse essentielle de la paroi cellulaire. En effet, le caractère anisotrope du bois est en grande partie gouverné par l'inclinaison des microfibrilles de cette couche. En conséquence, le retrait, les propriétés mécaniques, la conductivité thermique et acoustique, entre autres, sont des propriétés gouvernées par l'AMF.

Parfois, l'inclinaison des microfibrilles ou AMF est confondue avec la pente du fil du bois, car les deux phénomènes produisent des conséquences très similaires. Nous avons vu que le premier concept correspond au désalignement des arrangements moléculaires par rapport à l'axe longitudinal des cellules du xylème. Par contre, la pente du fil correspond au désalignement de l'axe des cellules longitudinales (fibres ou trachéides) par rapport à l'axe du tronc de l'arbre ou par rapport à l'axe selon la longueur d'une pièce sciée. Dans l'arbre vivant, la pente du fil est liée aux accroissements annuels en spirale dans le tronc (Fig. 9) et aux déformations locales générés par les branches.

Autant l'AMF que la pente du fil présentent une évolution dans le diamètre et dans la hauteur, c'est-à-dire, au cours de la croissance de l'arbre. Même, l'AMF peut présenter une importante variation à l'intérieur d'un accroissement annuel (Evans *et al.*, 1999).



Figure 9. Accroissements annuels en spirale dans le tronc d'un Pin (Leelavanichkul et Cherkaev, 2005).

3.2 Méthodes de mesure pour l'AMF

Les méthodes de mesure pour l'AMF sont de deux types : méthodes visuelles et méthodes par diffraction de rayons X.

3.2.1 Techniques visuelles

La technique visuelle reconnue comme une des plus précises pour mesurer l'inclination des microfibrilles correspond à la coloration des coupes microtomiques à l'iode (Huang *et al.*, 1997). Cette technique demande de l'expérience dans la reconnaissance de la couche S2 par rapport aux autres couches de la paroi. Une autre technique visuelle fréquemment rencontrée consiste à mesurer l'inclination préférentielle de l'allongement des ponctuations. Ces ponctuations sont bien visibles dans des zones appelées « champs de croisement », qui sont les intersections entre les cellules longitudinales et les cellules des rayons ligneux (Donaldson, 1991 ; Lichtenegger *et al.*, 2003). Une autre technique est la détection de l'inclination préférentielle des micro-fentes produites artificiellement dans la paroi cellulaire à l'aide d'un séchage violent ou par des ondes ultrasonores (Fig. 10) (Huang *et al.*, 1997). La microscopie avec lumière polarisée est aussi utilisée pour mettre en évidence l'inclination des microfibrilles (Prud'homme et Noah, 1975 ; Leney, 1981 ; Andersson *et al.*, 2000).

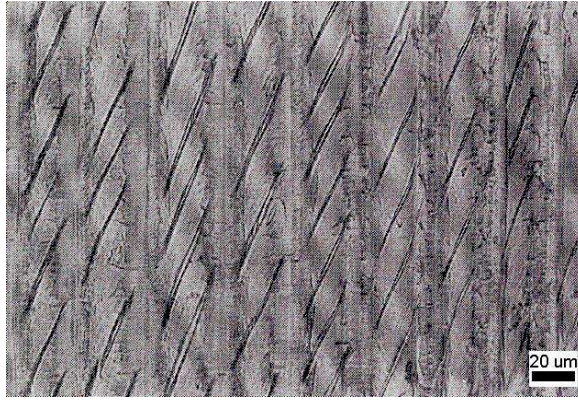


Figure 10. Microfibrilles dans des parois cellulaires de 9 trachéides produites par séchage violent et observées à l'aide d'un microscope conventionnel (Huang *et al.*, 1997).

3.2.2 Diffraction des rayons X

La diffraction de rayons X (*X-ray diffraction* - XRD) correspond à un phénomène d'interférence coopérative des photons ayant interagi avec des électrons fortement liés aux atomes d'un matériau. La XRD est utilisée comme une technique standard de cristallographie. Vu le caractère cristallin des arrangements celluloseux, la XRD peut-être utilisée davantage comme une méthode indirecte, mais robuste et rapide pour l'estimation de l'AMF. Au contraire des mesures de cristallinité des matériaux, la mesure de l'AMF n'utilise pas un matériau transformé en poudre, car la structure microscopique de la paroi cellulaire doit être préservée. Les échantillons sont coupés selon les plans d'anisotropie du bois et le faisceau X incident est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Selon la section transversale du faisceau et l'épaisseur de l'échantillon, plusieurs centaines de cellules contribuent à la diffraction.

Deux techniques de diffraction sont couramment utilisées pour estimer l'AMF : elles se nomment : diffraction aux grands angles (WAXS – *Wide Angle X-ray Scattering*) et diffraction aux petits angles (SAXS – *Small Angle X-ray Scattering*).

a) Diffraction à large angle

La technique WAXS est plus largement utilisée et elle est basée sur l'équation classique de Bragg :

$$n \lambda = 2 d \sin(\theta)$$

Où :

λ : longueur d'onde du rayonnement

d : distance entre couches d'atomes

θ : angle d'incidence du rayonnement

n : un nombre entier

Le résultat du WAXS est généralement représenté sur un diagramme de diffraction qui peut être interprété en fonction des plans de symétrie de la fibrille élémentaire (Fig. 11).

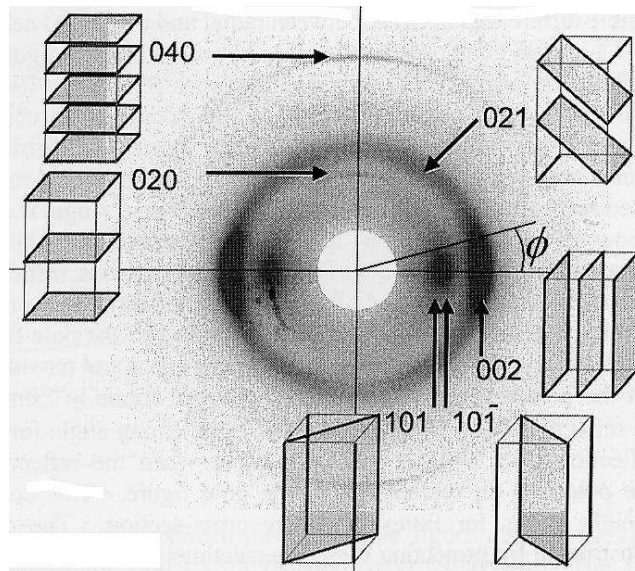


Figure 11. Diagramme 2-D de diffraction des plans cristallins de la cellulose (ϕ est l'angle azimutal).
(Evans, 1997).

Le vecteur normal au plan cristallin (040) est parallèle à l'axe de la fibrille élémentaire ; par conséquent la largeur azimutale du pic de la diffraction issue de ce plan donne presque directement l'inclinaison des arrangements cellulosiques. Malheureusement, l'intensité de diffraction de ce plan cristallin est faible et demande une durée d'acquisition importante. Par contre, la diffraction issue des autres plans est forte, mais son interprétation est complexe à cause de la structure spiralée des microfibrilles dans la paroi. Néanmoins, vu l'intensité importante de la diffraction du plan cristallin (002), il est très souvent utilisé pour accéder indirectement à l'AMF du bois.

Pour le plan cristallin (002), la distance entre couches atomiques est 3,91 Å. En utilisant le faisceau de rayons X issu de la raie $K\alpha$ du Cuivre, le cône de diffusion forme un angle 2θ de 23° environ. Lorsqu'on représente sur un graphique le cercle de diffraction comme l'intensité en fonction de l'angle azimutal (ϕ), la courbe présente deux pics écartés de 180 degrés (Fig. 11 et 12). Dans plusieurs travaux, l'auteur Evans (Evans *et al.*, 1996), (Evans 1997), (Evans *et al.*, 1999) utilise une relation empirique entre la largeur des pics et l'AMF (paramètre T).

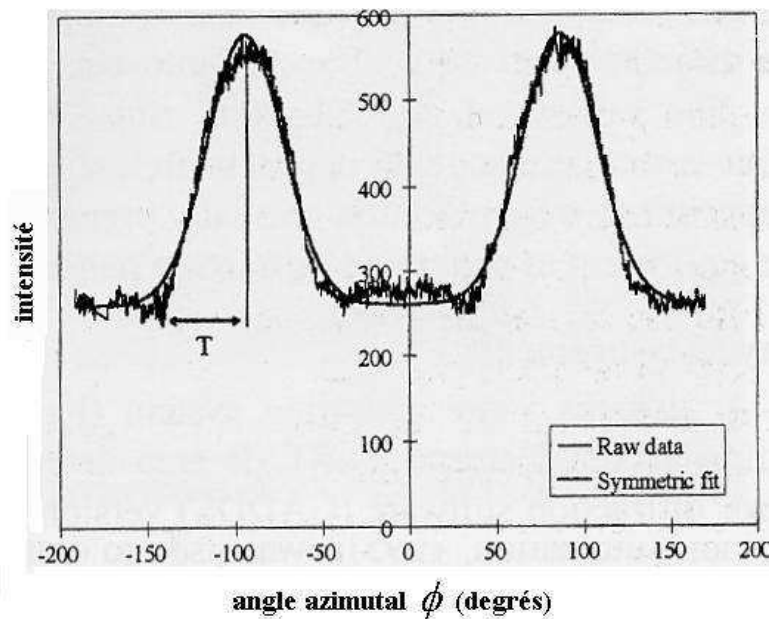


Figure 12. Intensité de diffraction du plan (002) en fonction de l'angle azimutal.

b) Diffraction à petit angle

La technique SAXS est fondée sur une base complètement différente que WAXS. Ici, la diffusion est générée par le contraste entre la densité électronique de la microfibrille et la densité électronique de son entourage (matrice de lignine et hémicelluloses) (Fig. 7). Les microfibrilles sont supposées être des cylindres très fins et la diffraction est générée par un disque perpendiculaire à la direction de son axe, selon la figure 13 (Reiterer *et al.*, 1999).

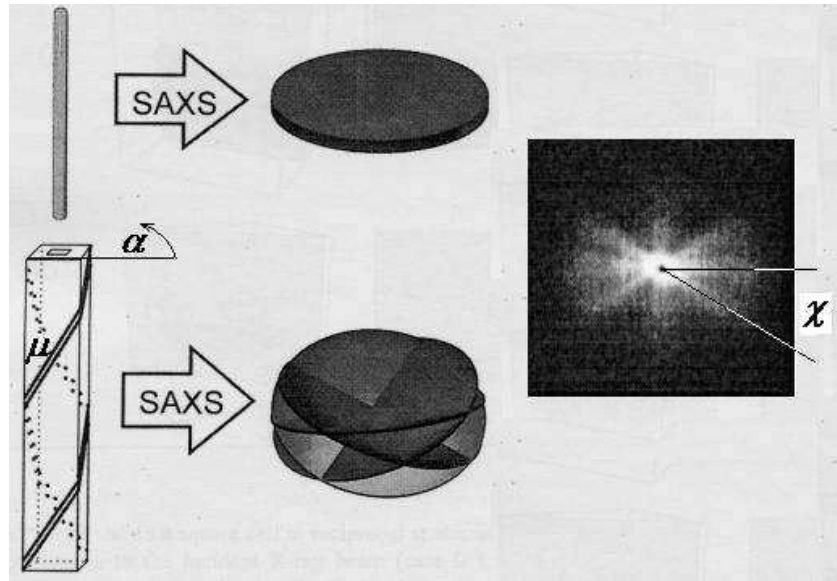


Figure 13. Diffraction à petit angle de rayons X (SAXS) pour une microfibrille individuelle et des cellules carrées.

De la même façon que la technique WAXS, l'interprétation du diagramme de diffraction est complexe à cause de la structure en spirale des microfibrilles dans la paroi. L'angle χ qui détermine l'orientation du pic de diffraction dépend de l'AMF et de la rotation α de la microfibrille autour la paroi cellulaire (Fig. 13), selon :

$$\tan(\chi) = -\tan(\mu) \cos(\alpha)$$

4. Equipement destiné à l'évaluation non-destructive du bois

Une énumération des équipements commercialisés actuellement et des derniers développements est présentée dans l'Annexe 1. Dans les paragraphes suivants nous décrivons les principales caractéristiques de ces appareils.

4.1 Systèmes à implantation industrielle

Différents fabricants tels que Wagner Electronics Inc. et James Instruments Inc., proposent des appareils pour mesurer la teneur en eau par micro-ondes. Ces appareils mesurent la constante diélectrique moyenne des matériaux tels que : bois, maçonnerie, béton ou brique. La constante diélectrique est directement corrélée à la quantité d'eau présente dans le milieu. Des calibrages doivent être faits pour compenser l'effet de la température et la nature du matériau. Ces mesures sont fiables jusqu'à 20-25% de teneur en eau sous une profondeur de mesure qui atteint 25 mm.

Le système ScanWood (développé par le pôle productique du CTBA à Pont-à-Mousson), le système WoodEye (développé par Innovativ Vision en Suède) et BoardMaster (ScanFin en Finlande) sont des machines en ligne pour observer la surface du bois. Ces machines utilisent des capteurs sensibles aux ondes électromagnétiques du domaine du visible pour la détection des singularités du bois selon les différences de couleur et texture.

Dans les systèmes en ligne utilisant des ondes élastiques nous pouvons citer le *Veneer Tester* de Metriguard Inc. (Etats-Unis) utilisé pour la classification des placages de bois, selon la pente de fil.

L'appareil Stenograph© proposé par GRECON est un système utilisant les rayons X pour mesurer en ligne le profil de densité des panneaux en bois. Ce système a un caractère très innovant parce qu'il est capable de mesurer le profil de microdensité à travers l'épaisseur des panneaux, lorsqu'ils défilent à la sortie des presses. Le faisceau, très bien collimaté pénètre avec un angle de 45 degrés par rapport à la surface de l'échantillon. Deux capteurs se placent

de l'autre côté de l'échantillon l'un à 0° et l'autre à 90° par rapport au faisceau. La combinaison des signaux d'atténuation et de diffusion permettent de calculer la densité au niveau du point de diffusion selon une technique propre au fabricant. La modification de la position du capteur mesurant le signal diffusé permet de balayer l'épaisseur du panneau avec une résolution spatiale qui peut atteindre $250 \mu\text{m}$ (Grecon, 2004).

La machine XLG (*X-ray Lumber Gauge*) fabriqué par COE-Newnes au Canada, est un système commercial utilisant les rayons X pour la classification à haute vitesse du bois d'œuvre. Ce système a été conçu pour concurrencer les machines continues de classification par sollicitation mécanique. En pratique, ce système réalise une cartographie de la densité des avivés qui est corrélée à des valeurs de résistance mécanique.

En Suède, un scanner de rayons X a été mis au point pour le triage des billons selon leur qualité. Le système *RemaLog X-ray* est constitué par deux sources fixes de rayons X qui envoient des faisceaux vers deux capteurs linéaires. Ils détectent le rayonnement transmis à travers le billon (Fig. 14). Le système s'avère capable de détecter, avec une résolution spatiale de 1 cm, des caractéristiques internes dans des billons qui défilent longitudinalement à une vitesse qui peut atteindre 125 m min^{-1} (Oja *et al.*, 2004).

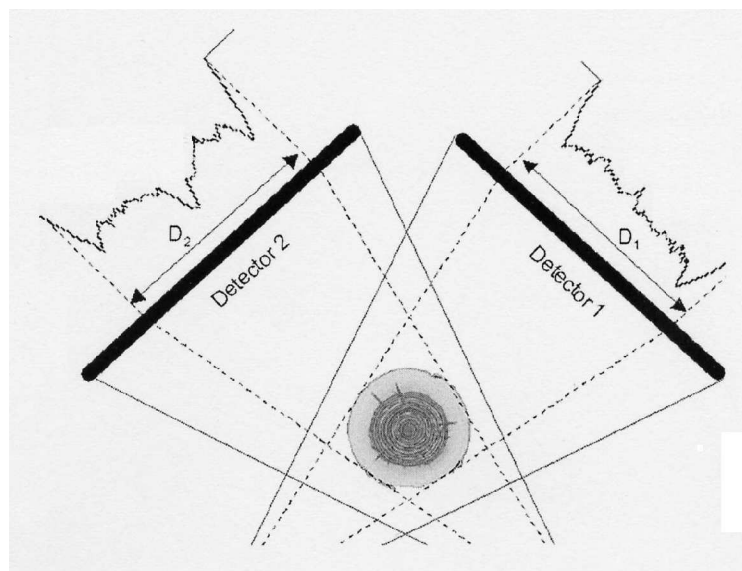


Figure 14. Schématisation du scanner RemaLog (Oja *et al.*, 2004).

4.2 Systèmes de laboratoire ou pour bois mis en œuvre

L'appareil Woodtrax fabriqué en Suède par Cox Analytical Systems, consiste en un système de radiographie digital capable de mesurer un profil de microdensité dans un échantillon prélevé dans une carotte en bois ou dans d'autres matériaux. Selon les données du constructeur, la résolution spatiale du profil densitométrique peut atteindre 10 μm . La fluorescence produite par le faisceau de rayons X est aussi utilisée optionnellement pour étudier la composition chimique élémentaire des échantillons. La résolution spatiale dans ce cas atteint 20 μm (Lindeberg, 2004).

De nombreux fabricants proposent des appareils à ondes élastiques pour l'évaluation non-destructive des matériaux. Ils permettent la détection de singularités (fentes, décollages, pourriture, pente du fil, etc.) et certains d'entre eux sont destinés à la mesure de la rigidité mécanique des matériaux, au moyen de la théorie de l'élasticité. Nous pouvons citer : Bing 2000 (CIRAD-France), GrindoSonic (Lemmens, Belgique), E-Computer et Stress wave tester (Metriguard Inc.), V-meter (James Instruments Inc.), entre autres. Un guide d'utilisation et d'interprétation des mesures avec les dispositifs les plus répandues a été présenté récemment par Wang *et al.* (2004).

Le Resistograph (Rinntech, Allemagne) consiste en une perceuse portative destinée à étudier la qualité du bois des arbres sur pied ou du bois mis en œuvre. Ce système permet d'obtenir indirectement un profil radial de microdensité à haute résolution spatiale au moyen de la mesure de l'effort de coupe de la mèche. Des données du fabricant indiquent une résolution spatiale de 10 μm dans une profondeur maximale de 45 cm.

L'appareil commercialisé comme Pilodyn fait la mesure de la longueur de pénétration d'une aiguille chargée par un ressort à une énergie de 6 Joules. Cette technique a été conçue comme une méthode rapide pour estimer la présence de pourriture douce (soft rot) dans des poteaux téléphoniques en bois. Vu la simplicité technique de l'appareil et de son mode d'opération en terrain, il a été largement utilisé pour les arbres sur pied, notamment pour l'étude génétique des populations forestières (Hansen, 2000).

4.3 Prototypes et derniers développements

Le système SilviScan 1 a été conçu au CSIRO (Australie) pour mesurer par rayons X et lumière visible la taille de cellules, l'épaisseur de parois cellulaires et la microdensité, dans des échantillons en bois (Evans, 2002a). Le système mesure automatiquement ces caractéristiques avec une résolution spatiale de quelques micromètres. Une version postérieure appelée SilviScan 2 présente un système de diffractométrie par rayons X pour l'obtention automatique d'un profil d'angle de microfibrilles. La méthode est basée sur la mesure de diffraction du plan (002) par WAXS. L'acquisition et l'analyse de chaque image de diffraction prennent 10 secondes ; donc une analyse à intervalles de 200 µm prend 3 heures pour un échantillon de 200 mm de longueur. Actuellement le développement d'une nouvelle génération du SilviScan a été mise en route ; selon Evans (2002a), le modèle SilviScan 3 incorporera une méthode spectroscopie par réflectance des infrarouges.

Actuellement des nombreux groupes de recherche sur le bois sont intéressés par l'imagerie volumique. Nous pouvons dire que l'utilisation des scanners (souvent des équipements de diagnostic médical de rayons X ou de résonance magnétique) pour étudier le bois devient une expérience chaque année plus courante partout dans le monde. La mise en route d'imagerie 3-D à l'échelle des grandes pièces du bois vert comme billons, nécessite des appareils chers et complexes. Hors du champ médical, Forintek (Institut de Recherche sur les produits du bois du Canada) a par exemple terminé en 2001 la construction d'un des plus grands scanners à tomographie par rayons X du monde. La zone de détection a un diamètre de 1 m par 5 m de long, avec un faisceau 30 fois plus puissant qu'un scanner médical (Lister, 2004). Dans ce scanner, des objets en bois (mais aussi dans des autres matériaux) ayant jusqu'à 2 tonnes peuvent être manipulés avec une résolution spatiale de 0,25 mm.

Comme résultat d'examen de tomographie, il existe un volume très considérable de données, qui ne sont pas directement exploitables ou sont bruitées, d'où la nécessité de traitements informatiques complexes. Par ailleurs, la difficulté à s'affranchir des hautes teneurs en eau complique la détection des singularités internes dans des billons (Lindgren, 1991 ; Schad *et al.*, 1996)

La faisabilité technique et l'utilité économique de la détection par tomographie de rayons X de défauts internes des billons juste avant le premier coup de scie a été proposé par nombreux

auteurs (Chang *et al.*, 1989 ; Chang, 1992 ; Schmoldt, 1996 ; Aguilera *et al.* 2002 ; Rinnhofer *et al.*, 2003).

En Allemagne Niemz *et al.* (1998) ont décrit un prototype de tomographie par rayons γ pour l'inspection in situ des arbres vivants (Fig. 15). En Suède à l'Université Technique de Lulea, une cellule de séchage a été conçue pour se placer dans un scanner médical de tomographie de rayons X de la marque Siemens (Fig. 16) Les résultats au cours du séchage des avivés ont été présentés par (Pang et Wiberg, 1998 ; Wiberg et Moren, 1999). En utilisant le même scanner, différents auteurs (Sépulveda, 2001 ; Sépulveda *et al.*, 2003) ont essayé de mesurer la pente de fil du bois dans des billons frais d'Epicéa, et d'autres (Longuetaud, 2004) ont présenté des résultats sur la détection de la moelle de billons récoltés en France de la même essence. D'autre part, la réalisation de tomographie de rayons X à haute résolution spatiale et à l'échelle de mini-échantillons a permis la mesure de la densité du bois avec une grande précision, en utilisant un scanner de microtomographie spécialement conçu. (Macedo *et al.*, 2002).

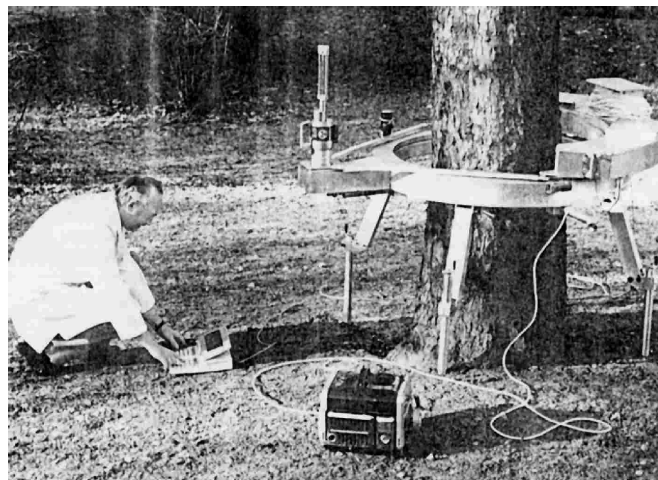


Figure 15. Prototype de tomographie par rayons γ pour l'inspection in situ des arbres vivants (Niemz *et al.*, 1998).

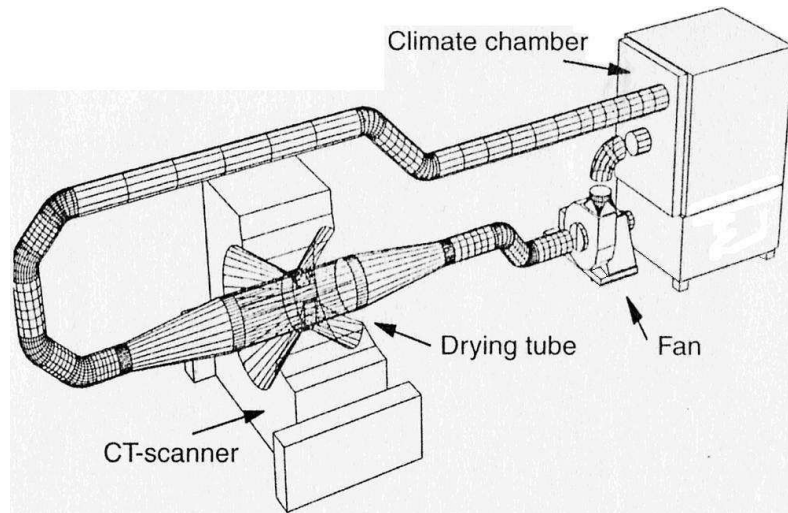


Figure 16. Schématisation de la cellule de séchage intégrée dans un scanner médical par tomographie de rayons X (Pang et Wiberg, 1998).

Rosenkilde et Glover (2002) ont étudié le séchage des avivés de bois à l'aide d'un équipement d'imagerie par résonance magnétique de laboratoire de haute résolution spatiale. Morales *et al.* (2004) ont essayé de reconstruire les accroissements annuels dans de billons de *Pinus radiata*, en utilisant un scanner médical d'IRM.

Récemment, il a été proposé d'utiliser un ensemble de transducteurs à ultrasons pour réaliser l'inspection bidimensionnelle dans une section transversale des arbres sur pied ; méthode appelée « tomographie ultrasonore ». (Martinis *et al.*, 2004).

En dehors du domaine du bois, récemment a été présenté un prototype de stéréoscopie de rayons X pour des objets déplacés avec un tapis roulant. Ce système utilise une source qui émet vers deux capteurs linéaires décalés. Le parallaxe engendrée par ces deux points de vue d'un même objet est utilisée pour reconstituer une image d'apparence tridimensionnelle (Evans, 2002b). Bien que cet appareil ait été conçu dans le domaine de la sécurité aéroportuaire, il semble possible appliquer une méthode similaire dans le domaine de l'évaluation non destructive du bois.

5. Synthèse et Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons décrit le bois, depuis sa configuration macroscopique jusqu'à sa structure sub-microscopique, ainsi que les principales propriétés du matériau bois qui sont déterminées par cette structure. En même temps, nous avons décrit, au moyen d'une revue bibliographique, les principales méthodes non destructives qui sont actuellement utilisées ou envisagées, pour l'évaluation non destructive des propriétés du matériau. Nous pouvons synthétiser ces méthodes et les propriétés du bois sur auxquelles elles peuvent être destinées, dans le diagramme de la page suivante (Fig. 17).

A gauche du diagramme nous avons regroupé les radiations électromagnétiques organisées par plages de longueur d'onde décroissante, à savoir : microondes, infrarouges, visible et rayons X et γ . Chacune des plages présente des propriétés qui permettent d'interagir avec les matériaux pour l'obtention de mesures non destructives.

A droite du diagramme nous avons placé des méthodes de nature autre que les radiations électromagnétiques, tels que : les ondes élastiques et les mesures électriques. La résonance magnétique nucléaire est un cas particulier, car nous avons vu qu'elle utilise des ondes électromagnétiques, mais la méthode de mesure diffère des méthodes habituelles.

Nous pouvons conclure que l'évaluation non destructive des propriétés du bois constitue un enjeu économique, technique et scientifique. Dans ce contexte, les rayons X constituent un moyen privilégié, parce qu'ils établissent des rapports directs et relativement simples avec plusieurs propriétés du bois.

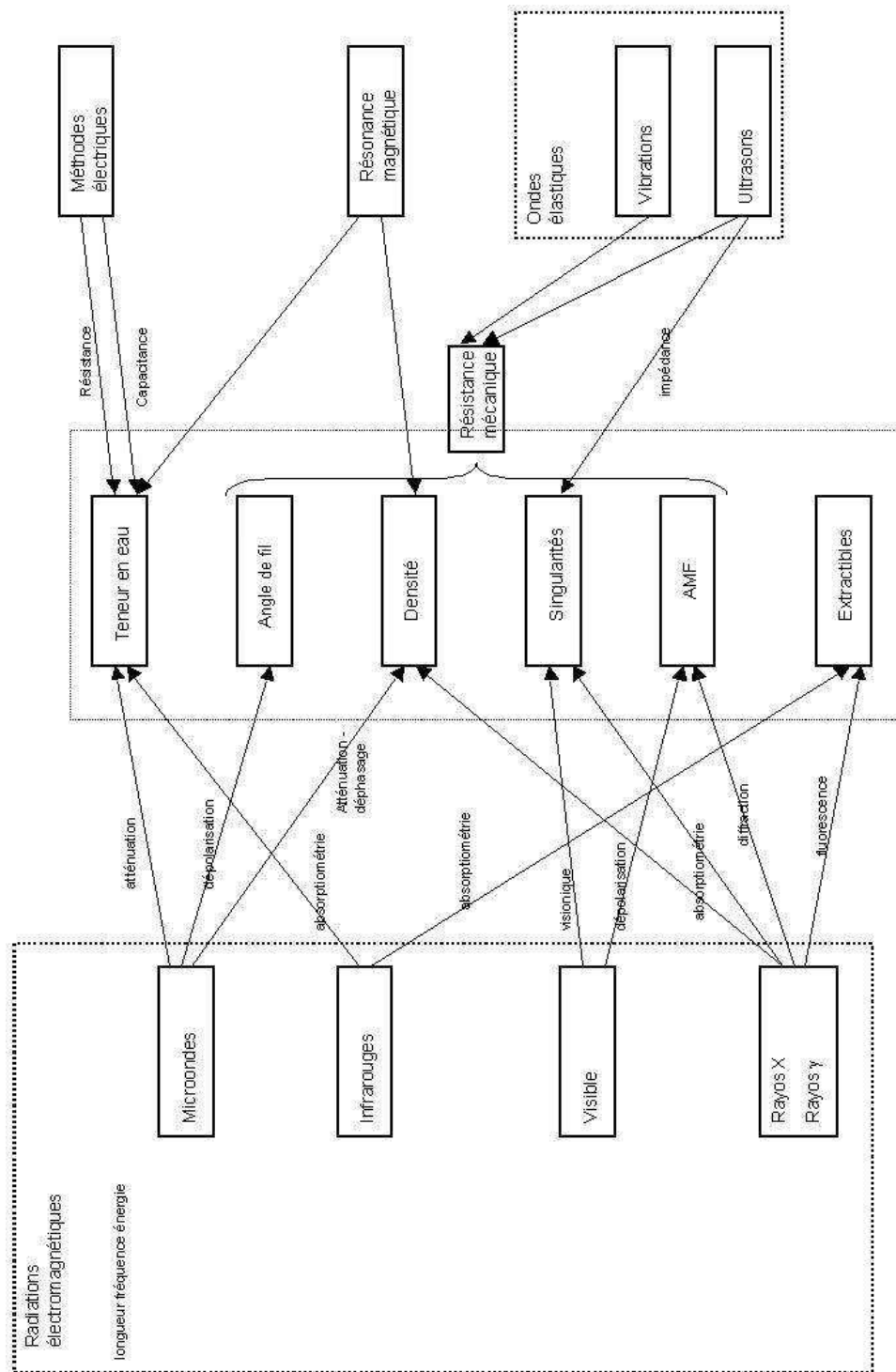


Figure 17. Schématisation de principales méthodes d'évaluation non destructive appliquées au bois.

Annexe 1

Quelques dispositifs d'évaluation non destructive dédiés au bois

Modèle	Fabricant	Utilisation
Bing 2000	CIRAD, France	Estimation de la rigidité par vibrations transversales
Grindosonic	Lemmens, Belgique	
E-Computer	Metriguard Inc., EU	
V-Meter	James Inc., EU	Estimation de la rigidité ou détection de défauts par propagation d'ondes élastiques
239A Stress Wave Timer	Metriguard Inc., EU	
Microsecond Timer	Fakopp, Suisse	
Impulse Hammer	IML, Allemagne	
Veneer Tester	Metriguard Inc., EU	
Wagner Moisture Meters	Wagner Electronics Inc., EU	Estimation de la teneur en eau par mesure de la constante diélectrique du bois
James Aquameter	NDT James Instruments Inc., EU	
XLG	COE-Newnes, Canada	Estimation en ligne de la rigidité (par corrélation avec la densité) des avivés par atténuation des rayons X
RemaLog X-ray	RemaControl, Suède	Triage en ligne des billons par atténuation des rayons X
Stenograph	GRECON	Estimation en ligne de la densité dans l'épaisseur des panneaux par atténuation et diffusion des rayons X
Woodtrax	Cox Analytical Systems, Suède	Estimation de densité et composition chimique par rayons X
ScanWood	CTBA, France	Détection en ligne des défauts par vision
WoodEye	Innovativ Vision, Suède	
BoardMaster	ScanFin, Finlande	
Resistograph	Rinntech, Allemagne	Estimation de la densité par effort de coupe
Pilodyn	Proceq S.A., Suisse	Estimation de la densité par dureté
Silviscan	CSIRO, Australie	Estimation de densité, MFA et propriétés anatomiques par rayons X et vision

Chapitre II

Physique des Rayons X

Introduction

Ce chapitre de thèse a pour objet d'exposer le contexte théorique que nous utiliserons dans les chapitres postérieurs. Dans cet objectif, tout au long de ce deuxième chapitre de thèse, divisé en trois parties, nous allons décrire les principales propriétés des rayons X.

Dans la première partie, nous étudierons la façon de générer des rayons X et nous caractériserons les interactions générées pour ce type de radiation électromagnétique au sein de la matière. Nous présenterons les principes physiques fondamentaux de l'interaction entre les photons X et la matière et leur mise en équations.

Dans la deuxième partie, nous décrirons le fonctionnement et spécificités des détecteurs utilisés le plus couramment. Nous décrirons le traitement des signaux et les principaux artefacts dans les mesures. Ces descriptions s'avèrent très utiles vis à vis des fortes exigences que nous allons imposer aux chaînes de mesures dans la démarche expérimentale ultérieure.

La troisième partie de ce chapitre sera dédiée à l'exploitation du rayonnement X pour l'évaluation des propriétés du bois. Nous passerons en revue les méthodes par atténuation du rayonnement et nous décrirons la façon dont la mesure de la diffusion incohérente et cohérente peut être exploitée pour l'obtention d'informations liées aux propriétés du matériau bois.

Finalement, dans les conclusions et perspectives nous tracerons les liens entre cet ensemble de descriptions théoriques et la démarche expérimentale que nous aborderons dans les chapitres suivants.

1. Production de rayons X

1.1 Le tube de rayons X

L'énergie photonique (E) d'un rayonnement électromagnétique est directement proportionnelle à sa fréquence (ν) ; où la constante de proportionnalité (h) est la constante de Planck :

$$E = h \nu$$

Les rayons X sont des ondes électromagnétiques avec une longueur d'onde qui varie de 10 nm à 0,001 nm ; ou de 120 eV à 1 MeV en termes d'énergie photonique (1 eV ou électronvolt est égal à $1,602 \times 10^{-19}$ Joules). L'énergie nécessaire pour ioniser par effet photoélectrique des molécules biologiques atteint quelques eV. L'énergie photonique des rayons X dépasse de plusieurs ordres de grandeur cette valeur, d'où sa dangerosité.

Couramment, le faisceau X est généré à partir du bombardement par des électrons d'une cible métallique dans un tube sous vide. Pour les tubes utilisés dans le champ médical, la différence de potentiel électrique qui permet d'accélérer les électrons dépasse rarement de 100 kV. Pour les tubes utilisés dans des applications industrielles, elle peut aller jusqu'à 1000 kV.

A l'intérieur du tube, la source d'électrons est presque toujours un filament en tungstène qui est chauffé par un courant électrique de quelques ampères (Fig. 1). Le matériau composant la cible, ou anticathode, est choisi en fonction de l'application pour laquelle le tube est destiné. Quand le faisceau d'électrons est arrêté par l'anticathode, presque la totalité de l'énergie cinétique est dissipée sous forme de chaleur. Donc, la cible doit être impérativement refroidie pour empêcher sa fusion ou sa déformation exagérée. Une petite proportion de l'énergie sert à produire des rayons X à travers deux processus : le freinage (« Bremsstrahlung ») et le spectre de raies.

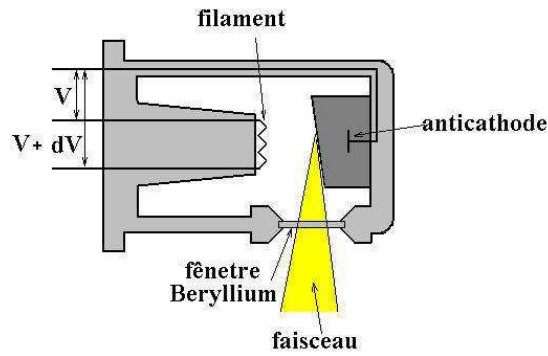


Figure 1. Tube de rayons X

Le Bremsstrahlung est dû au freinage des électrons incidents exercé par les couches électroniques au moyen de la force électrostatique. La distribution énergétique des photons émis est continue (Fig. 2). L'énergie maximum d'un photon X ne peut être supérieure à celle de l'électron avant freinage sur l'anticathode. Il en résulte que ce spectre est limité à une énergie maximale (ou λ_{\min}) équivalente au voltage appliqué, avec une intensité de flux photonique qui trouve son maximum à une longueur d'onde de l'ordre de $1,5 \lambda_{\min}$.

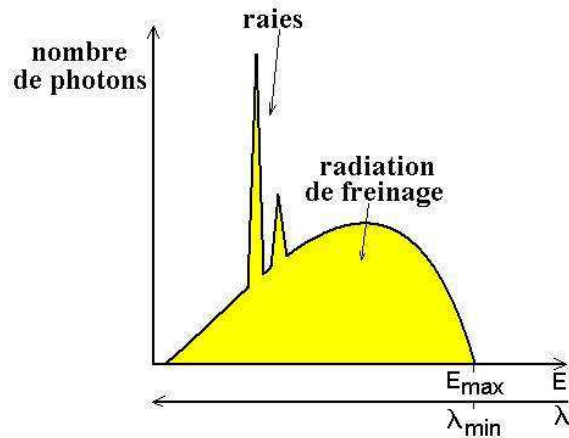


Figure2. Spectre caractéristique issu d'un tube des rayons X.

La distribution spectrale des raies est caractéristique de la nature de l'anticathode. Elles correspondent à des « sauts d'énergie » des électrons dans les couches atomiques. Ces sauts, ou transitions, sont la conséquence de la relaxation de l'atome après que le bombardement ait généré l'éjection de certains des électrons des couches internes. Pour identifier ces transitions on utilise la notation de Siegbahn (Fig. 3). Par exemple, lorsque se produit une vacance dans la couche K et qu'un électron situé deux couches au dessus vient occuper cette place, il génère une transition $K\beta$. Un photon X est alors généré. Son énergie correspond à la différence

d'énergie entre les deux couches, (dans cet exemple la différence énergétique entre les couches K et M).

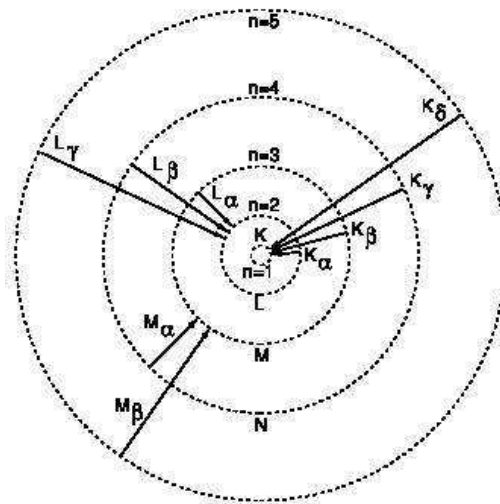


Figure 3. Transitions électroniques selon la notation de Siegbahn.

En réalité chacune des couches est formée par plusieurs sous-couches et les possibilités des transitions électroniques sont plus abondantes ($K_{\beta 1}$, $K_{\beta 2}$, etc). Les différences d'énergie entre les couches atomiques sont d'autant plus importantes que l'atome est lourd. Au fur et à mesure que les atomes constitutifs de la cible sont plus lourds, les raies d'émission sont situées dans une gamme plus énergétique. Or, en choisissant convenablement l'élément chimique qui compose la cible, il est possible d'obtenir un fort flux de photons X à une énergie photonique spécifique. Dans l'Annexe 1 nous présentons un tableau qui résume les niveaux d'énergie pour les transitions des principaux éléments chimiques.

1.2 Caractéristiques du faisceau

1.2.1 Anisotropie du faisceau

La distribution de photons émis par un tube de rayons X n'est pas homogène dans l'espace (Fig. 4). Le flux de photons est plus important près de l'axe géométrique du cône et se réduit vers la périphérie. Pour une anticathode à réflexion, la moitié du cône qui forme un angle plus petit par rapport à la surface de l'anticathode produit un rayonnement un peu plus énergétique. Ce phénomène est connu comme effet « talon » ou effet « heel » (Fung et Gilboy, 2000).

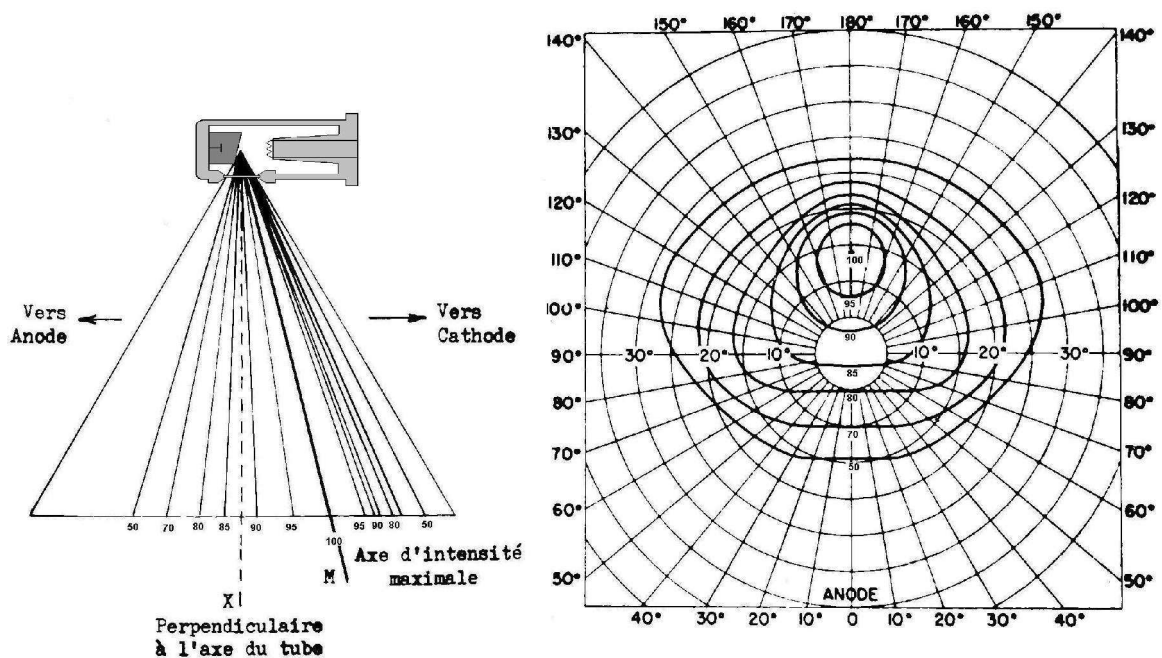


Figure 4. Hétérogénéité d'émission (D'après Polge, 1966).

1.2.2 Stabilité du flux

Dans la pratique, la différence de potentiel électrique fournie pour accélérer les électrons n'est pas constante. En effet, il existe un potentiel oscillant résultant de l'origine alternative du courant fourni par le secteur. Pour chaque période du courant alternatif, le générateur de haute tension génère plusieurs pulses avec pour objectif de réduire l'amplitude de l'ondulation de la tension ou « *ripple* ». Une ondulation résiduelle trop importante se traduit par un spectre plus bas où la fréquence des photons d'énergie élevée est particulièrement réduite (Carlsson et Carlsson, 1996).

La source de haute tension (générateur) affiche l'intensité des charges accueillies par l'anticathode et contrôle cette intensité en maîtrisant l'alimentation du filament par une boucle d'asservissement. Un paramètre important permettant de quantifier la qualité d'une source X est sa capacité à fournir un flux stable de photons au cours du temps. La dérive thermique du générateur doit être faible ainsi que l'amplitude d'ondulation. D'autre part, la mise en route du tube doit se faire graduellement, car un chauffage violent et des cycles répétés de chauffage et de refroidissement de la cible entraînent des contraintes localisées et même la création de micro-craquelures de surface. Lorsque la surface émissive du rayonnement X est rendue

irrégulière ou dépolie, elle génère un faisceau spatialement hétérogène car l'intensité du faisceau X est en partie absorbée par ces irrégularités de surface.

2. Les interactions des photons X avec la matière

2.1 La loi d'atténuation du rayonnement

Lorsqu'un faisceau de photons X pénètre dans un milieu, on constate une diminution progressive de son flux. Cette diminution d'intensité est due à l'interaction des photons avec les électrons du milieu. L'énergie des photons enlevés au faisceau incident se retrouve sous deux formes : une partie est absorbée par le matériau, et une partie est diffusée ou déviée de la direction du faisceau incident. Cette seconde partie peut-être de nouveau absorbée, diffusée ou simplement elle peut sortir du matériau.

La partie absorbée du faisceau interagit avec le milieu à travers un phénomène appelé « effet photoélectrique ». La partie diffusée interagit par un mélange de deux phénomènes : la diffusion cohérente et la diffusion incohérente, ou effet Compton.

La quantité de photons (dI) enlevés d'un faisceau primaire incident sur une couche de matériau d'épaisseur infinitésimale (dx) est proportionnelle au flux de photons incidents (I) et à l'épaisseur de cette couche :

$$dI = -\mu'(E) I dx$$

La constante de proportionnalité $\mu'(E)$ est appelée coefficient d'atténuation linéaire (cm^{-1}). La solution de cette équation différentielle donne l'équation de Beer-Lambert :

$$I(E)/I_0(E) = e^{-\mu'(E)x}$$

Cette équation indique la proportion de photons transmis à travers une couche d'épaisseur (x) à partir d'un faisceau de rayons X de flux incident d'intensité $I_0(E)$. La valeur adimensionnelle (I/I_0) s'appelle le coefficient de transmission.

Le coefficient d'atténuation pour un composant chimique peut être calculé à partir des coefficients d'atténuation massiques de chacun de ces constituants pondérés par ses fractions massiques (w_i), selon :

$$\mu(E) = \sum w_i \frac{\mu_i(E)}{\rho}$$

avec :

$$w_i = \frac{A_i}{\sum A_i}$$

où :

$\frac{\mu_i(E)}{\rho}$: coefficient d'atténuation massique de l'élément i,

A_i : poids atomique de l'élément i.

Le coefficient d'atténuation linéaire $\mu'(E)$ est proportionnel à la section efficace atomique $\sigma^a(E)$ qui est une propriété physique des éléments chimiques :

$$\mu'(E) = \eta^a \sigma^a(E)$$

La section efficace atomique est mesurée en $\text{cm}^2 \text{atome}^{-1}$ ou barns atome^{-1} (1 barns = 10^{-24}cm^2). La constante de proportionnalité η^a correspond à la densité atomique du matériau, calculée comme :

$$\eta^a = \rho \times \frac{N_a}{A}$$

où :

ρ : densité du matériau (g cm^{-3}),
 A : poids atomique du matériau (g mol^{-1}),
 N_a : nombre d'Avogadro ($6,022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$).

Pour des niveaux énergétiques en dessous de 1 MeV, la section efficace atomique peut être considérée comme la somme de 3 membres :

$$\sigma_{total}^a(E) = \sigma_{photo}^a(E) + \sigma_{coh}^a(E) + \sigma_{incoh}^a(E)$$

où :

$\sigma_{photo}^a(E)$: section efficace atomique de l'effet photoélectrique,

$\sigma_{coh}^a(E)$: section efficace atomique de la diffusion cohérente,

$\sigma_{incoh}^a(E)$: section efficace atomique de la diffusion incohérente.

La figure 5 présente ces fonctions pour l'hydrogène et l'oxygène calculées en utilisant le logiciel XCOM du NIST² (Hubbell et Seltzer, 2004).

La figure 6 montre la proportion respective des interactions pour chaque section efficace, par rapport à la section efficace totale et pour différents numéros atomiques. On constate que la diffusion cohérente atteint des proportions qui ne dépassent pas 10%, indépendamment du numéro atomique. En revanche, la diffusion incohérente (Compton) diminue très fortement en fonction du numéro atomique du matériau, terrain qui est gagné par l'effet photoélectrique. Néanmoins, la proportion d'interaction photoélectrique se voit fortement réduite lorsque l'énergie du rayonnement est plus intense.

² National Institute of Standards and Technology. Etats Unis.

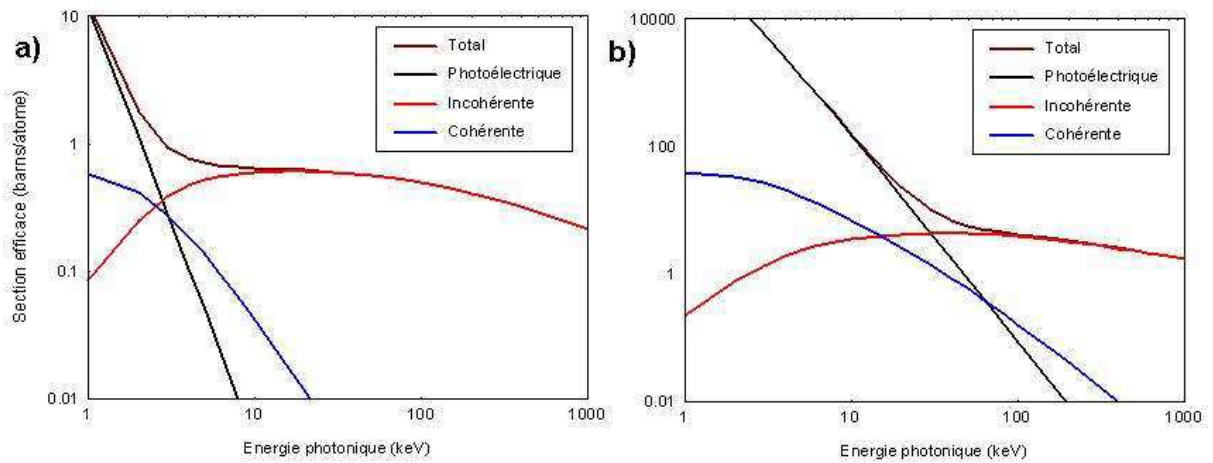


Figure 5. Décomposition de la section efficace atomique. (a) Hydrogène et (b) Oxygène. (calculées par XCOM).

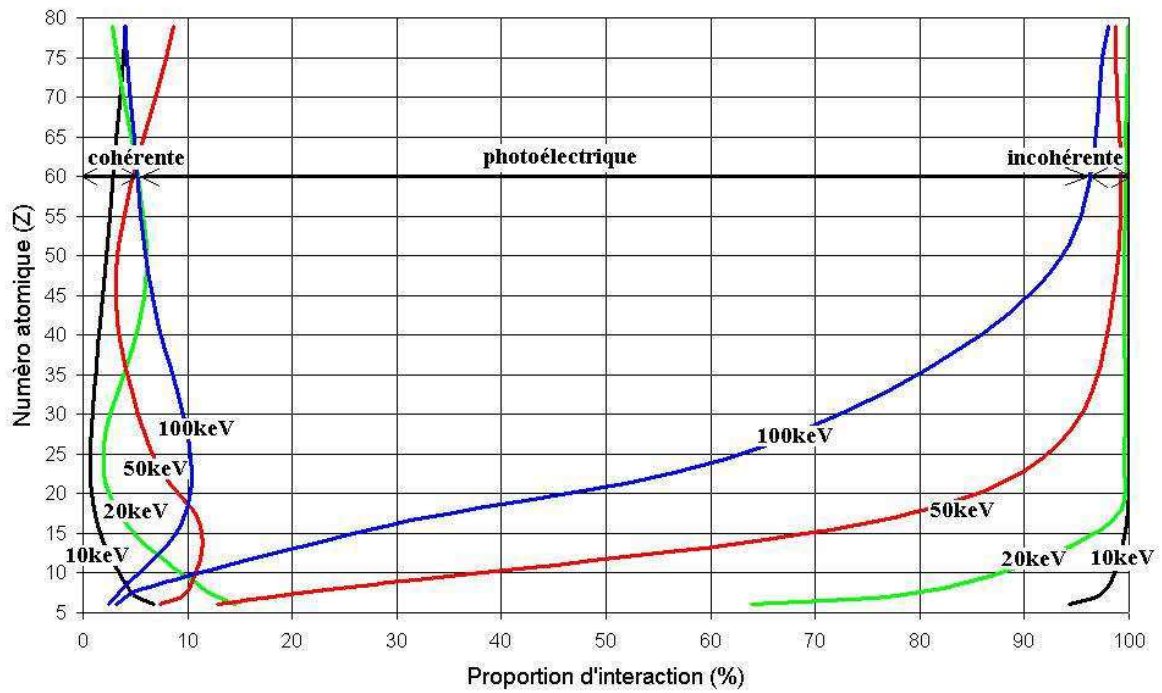


Figure 6. Proportion de chaque section efficace atomique (calculée à partir des données issues de XCOM).

2.2 Origine des interactions au niveau électronique

2.2.1 La diffusion cohérente

La théorie nous apprend que, lorsqu'un faisceau de photons passe à proximité d'électrons fortement liés, ils engendrent la mise en oscillation momentanée des électrons. L'accélération des électrons se traduit par l'émission d'une radiation à une longueur d'onde similaire au rayonnement incident (Fig. 7). La distribution angulaire des photons diffusés est connue sous le nom de « section efficace différentielle électronique » et est décrite par l'équation de Thomson :

$$\frac{d\sigma_{Tho}^e}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} (1 + \cos^2 \theta) \quad (8)$$

où :

$d\sigma_{Tho}^e / d\Omega$: section efficace différentielle électronique, c'est à dire, le nombre de photons diffusés par électron dans un angle solide infinitésimal $d\Omega$ (photons électron⁻¹ stéradian⁻¹),

r_0 : rayon classique des électrons égal à $2,8179 \times 10^{-15}$ (m),

θ : angle de diffusion.

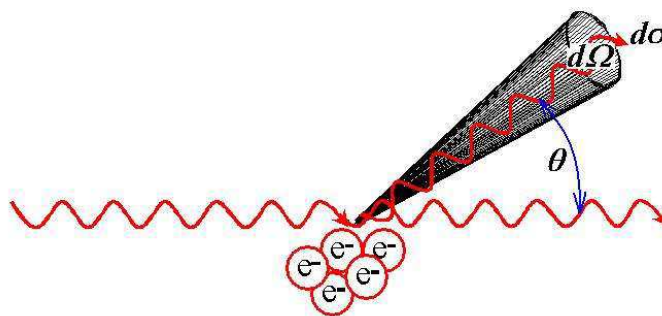


Figure 7. Origine de la diffusion cohérente (Thomson).

L'intégrale de $d\sigma_{Tho}^e / d\Omega$ sur la sphère donne la section efficace totale de la diffusion Thomson (Kirz, 2001) :

$$\sigma_{Tho} = \int \frac{d\sigma_{Tho}^e}{d\Omega} d\Omega = 6,652 \times 10^{-29} \text{ m}^2$$

Il faut noter que la section efficace différentielle électronique et la section efficace électronique sont indépendantes du niveau d'énergie des photons. Or, la section efficace cohérente par atome est le résultat des interactions intra et inter-atomiques qui engendrent un phénomène d'interférence coopérative. Ce phénomène est connu sous le nom de diffusion de Rayleigh et se présente pour certains angles privilégiés. La distribution angulaire ou section efficace différentielle atomique est décrite par l'équation suivante (Johns *et al.*, 2002) :

$$\frac{d\sigma_{Ral}^a}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{Tho}}{d\Omega} F^2(x, Z)$$

La fonction $F^2(x, Z)$ correspond au « Facteur de Forme » du matériau et prend une valeur comprise entre zéro et le carré du numéro atomique de l'élément (Z^2). Le paramètre x correspond au « Momentum Transfer » mesuré en (nm^{-1}) qui met en relation l'angle de diffusion avec la longueur d'onde du rayonnement :

$$x = \frac{\sin(\theta / 2)}{\lambda} = \frac{E}{h c} \sin(\theta / 2)$$

Le courbe $F^2(x, Z)$ pour un composant chimique quelconque peut être estimée en pondérant des valeurs « F » tabulées pour chaque élément chimique dans un « modèle à atomes indépendants » (IAM : *independent atoms model*). Cette démarche peut être conduite en utilisant des tableaux mis à disposition de la communauté scientifique par NIST. Néanmoins cette approche est très approximative, et la forme réelle de $F^2(x, Z)$ est incertaine pour une grande partie des composants chimiques. Or, le Facteur de Forme a été bien étudié pour l'eau (Morin, 1982 cité par Carlsson et Carlsson, 1996) et (Johns *et al.*, 2002). Pour l'eau liquide, le Facteur de Forme mesuré présente un double pic d'intensité à 1,6 et 2,2 nm^{-1} (Fig. 8), qui n'est pas prédit par le modèle à atomes indépendants.

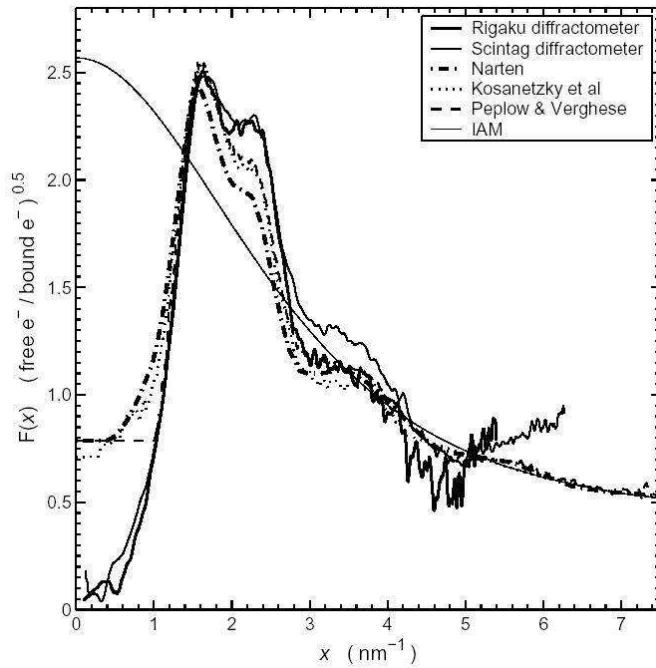


Figure 8. Racine carré du Facteur de Forme $F^2(x,Z)$ pour l'eau liquide. (D'après Johns *et al.*, 2002).

Pour des matériaux cristallins ces phénomènes d'interférence coopérative sont beaucoup plus intenses et concentrés que pour les matériaux amorphes. L'équation de Bragg exprime les conditions où les photons diffusés se mettent en phase (Fig. 9) :

$$n \lambda = 2 d \sin(\theta)$$

où :

d : distance entre plans atomiques,

θ : angle d'incidence du rayonnement par rapport à la couche atomique,

n : un nombre entier.

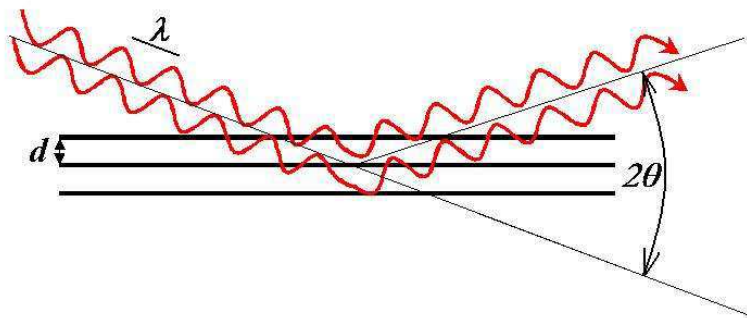


Figure 9. Equation de Bragg.

REMARQUE : Il faut noter que dans l'équation de Bragg l'angle formé par le faisceau transmis et le faisceau diffracté vaut 2θ . Au contraire, dans l'équation de diffusion de Thomson, l'angle formé par le faisceau transmis et le faisceau diffracté est θ .

2.2.2 La diffusion incohérente

Quand un photon entre en collision avec un électron libre ou faiblement lié, il lui cède une partie de son énergie $h\nu$. Un photon d'énergie plus faible est alors diffusé dans une direction θ différente de la direction incidente et l'électron est éjecté de sa position. La quantité d'énergie du photon résultant ($h\nu'$) est régie par l'équation de Compton :

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + (1 - \cos\theta)\alpha} \quad \text{Avec :} \quad \alpha = \frac{h\nu}{m_e c^2}$$

où :

m_e : masse au repos de l'électron ($9,1093097 \times 10^{-31}$ kg),

c : célérité de la lumière (299792458 m s⁻¹).

La distribution angulaire, ou section efficace différentielle de la diffusion incohérente correspond à la section efficace différentielle de Thomson corrigée par le facteur de Klein-Nishina (F_{KN}):

$$\frac{d\sigma_{KN}^e}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{Tho}^e}{d\Omega} F_{KN}$$

Le facteur de Klein-Nishina est une fonction complexe qui prend en considération l'énergie photonique. Ainsi, la section efficace incohérente (σ_{KN}) correspond à l'intégrale dans la sphère, selon la relation suivante :

$$\sigma_{KN}(E) = \int \frac{d\sigma_{KN}^e}{d\Omega} d\Omega \approx 8\pi r_0^2 \left[\frac{1 + 2\alpha + 1,2\alpha^2}{3(1 + 2\alpha)^2} \right]$$

De la même façon que pour la diffusion cohérente, la section efficace incohérente par atome est le résultat des interactions intra et inter atomiques. Le paramètre qui décrit ces interactions est la « fonction de diffusion incohérente » ; ou $S(x, Z)$. Ainsi :

$$\frac{d\sigma_{incoh}^a}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{KN}^e}{d\Omega} S(x, Z)$$

La fonction $S(x, Z)$ est inconnue pour une grande partie des composants chimiques. Mais différemment au Facteur de Forme, $S(x, Z)$ ne présente pas de pic notable dans des momentum transfer spécifiques.

2.2.3 L'interaction photoélectrique

Lorsqu'un photon entre en collision avec un électron des couches internes de l'atome, l'énergie du photon incident est transférée à l'électron qui est éjecté de sa couche (photoélectron). La production d'un photoélectron ne peut avoir lieu que si l'énergie du photon incident est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron. Cette différence d'énergie se retrouve sous la forme d'énergie cinétique du photoélectron sortant, laquelle est normalement transférée au milieu sous la forme de chaleur. Le retour de l'atome excité à son état fondamental s'accompagne d'une émission d'énergie sous la forme de radiation électromagnétique (photon de fluorescence) ou au moyen d'un électron Auger.

Le photon de fluorescence est émis lorsqu'un électron des couches supérieures prend la place laissée vacante par le photoélectron. Le spectre de raies issu de la fluorescence est une caractéristique de chaque élément chimique (transitions K, L, M) qui devient mesurable lorsque le photoélectron réussit à sortir du matériau³. Par ailleurs, l'émission de photons par fluorescence présente une probabilité d'occurrence (section efficace différentielle) égale pour toutes les directions angulaires (Carlsson et Carlsson, 1996).

La section efficace atomique associée à l'effet photoélectrique augmente lorsque le numéro atomique (Z) du milieu augmente ou l'énergie du faisceau (E) diminue:

³ Le spectre du rayonnement re-émis peut être utilisé pour déterminer la composition élémentaire du matériau.

$$\sigma_{photo}^a(E) = k Z^n E^{-m}$$

Les valeurs de n et m varient selon les études. Souvent des valeurs 5 et 3,5 sont données dans la littérature. Pour le bois, Lindgren (1991) a décrit des valeurs de n=3,4 et m=3,1. En tout cas, la relation montre que la section efficace photoélectrique réduit à mesure que l'énergie du photon incident augmente. Néanmoins, des discontinuités sont produites à certaines « énergies critiques » (Fig. 10). Pour un atome donné, chacune des couches présente une énergie critique pour éjecter son électron. Or, lorsque le photon dispose d'une énergie suffisante, il est capable d'ioniser des couches électroniques où les électrons sont plus fortement liés et l'absorption photoélectrique augmente fortement. Ces discontinuités correspondent aux « bords K » et « bords L » qui sont présentés dans l'Annexe 1.

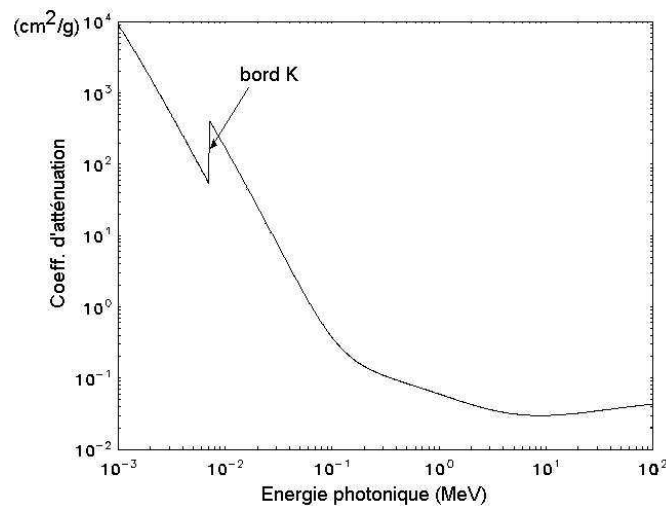


Figure 10. Coefficient d'atténuation pour le Fer et son bord K à 7,11 keV. (selon XCOM).

3. Détecteurs pour la spectrométrie de rayons X

3.1 Principes de détection et propriétés statistiques du rayonnement

Lorsque l'énergie des photons individuels conformant un faisceau électromagnétique est suffisamment élevée, son caractère corpusculaire et discret semble plus évident. Ainsi, au niveau des rayons X, les photons sont suffisamment énergétiques pour mettre en évidence le

caractère discret de l'émission et son caractère aléatoire associé, qui est régi par la distribution de Poisson :

$$P(x=k) = \frac{e^{-\omega} \omega^k}{k!}$$

où :

ω : taux moyen d'évènements,

k : quantité d'évènements.

Un phénomène suivant la loi de Poisson se caractérise par une variance égale à la moyenne ($\sigma^2 = \omega$). Par exemple, un flux moyen de 10.000 photons aura un écart-type de $\sqrt{10.000}$ qui représente un coefficient de variation de 1%. Nous verrons dans les chapitres suivants que cette variabilité inhérente au processus joue un rôle critique pour l'analyse quantitative de phénomènes et très particulièrement pour la mesure de la teneur en eau du bois.

La relative complexité de la détection des rayons X est basée sur la nécessité de provoquer la proportion la plus importante possible d'interactions dans le milieu de détection (efficacité du capteur). Par ailleurs, l'enjeu est d'obtenir une proportion très importante d'interactions photoélectriques au détriment des diffusions. Comme nous l'avons montré à la figure 5, si le matériau du capteur présente un Z important, une proportion plus grande de photons interagira par effet photoélectrique ($\sigma_{photo}^a \propto Z^5$). D'autre part, le coefficient de transmission aura tendance à s'approcher de l'unité.

Les capteurs à base de matériau scintillant sont les plus utilisés pour la détection de particules et de radiation électromagnétique ionisante. Une fine couche scintillante génère une radiation de longueur d'onde proche du visible en réponse à l'excitation de ses atomes par effet photoélectrique. De l'autre côté de la couche sensible, la lumière générée est conduite vers une caméra CCD ou vers un photomultiplicateur qui la transforme en un signal électrique. Il s'agit, donc, d'une transduction indirecte.

L'épaisseur optimale du scintillateur est à l'origine d'un compromis entre la capacité d'interagir avec le rayonnement ionisant et de laisser sortir la lumière générée. Or, si le flux

énergétique capturé est inférieur au flux énergétique incident, il présentera une variabilité statistique. Cette variabilité suit presque une distribution de Poisson. L'écart entre la distribution réelle et une distribution de Poisson est caractérisé par le « facteur de Fano », caractéristique du capteur. Le facteur de Fano s'approche de l'unité pour exprimer une variabilité forte ou s'approche de zéro pour exprimer une variabilité quasiment nulle (Ponpon et Siffert, 1995).

Les scintillateurs présentent une faible résolution énergétique lorsqu'il s'agit de réaliser une spectrométrie du rayonnement. Cette pauvre résolution énergétique peut être expliquée en partie par la faible efficacité qui se traduit par un fort facteur de Fano. En revanche, les scintillateurs se prêtent très bien à l'imagerie par rayons X, parce qu'ils peuvent être fabriqués en grandes surfaces à faible coût relatif.

D'autre part, les détecteurs par transduction directe génèrent un signal électrique en réponse aux interactions des photons (ionisation) ; et cela, sans passer par une phase intermédiaire de lumière visible. Donc, ils peuvent être fabriqués avec des épaisseurs plus importantes, et l'efficacité peut s'approcher plus facilement de l'unité. Par conséquent, la variation statistique liée à la détection est presque inexistante. D'autres mots, le facteur de Fano atteint une valeur proche de zéro, et la résolution énergétique devient élevée.

3.2 Traitement de signal et résolution spectrale

Le signal modulé en intensité électrique est intégré par un pré-amplificateur sensible à la charge. Ce pré-amplificateur produit une impulsion de tension directement proportionnelle au temps d'intégration. Le nouveau signal est envoyé vers un amplificateur de forme (*shaping amplifier*), qui génère une impulsion gaussienne amplifiée (Fig. 11). L'amplitude maximale de cette impulsion est proportionnelle à l'énergie déposée originalement et à la durée (μs) qui est préétablie par l'électronique (*shaping time*). Ce nouveau signal, doté d'une impulsion pour chaque photon ayant été capturé, est envoyé vers un analyseur multicanaux. L'analyseur sépare chacune des impulsions et génère un histogramme où il compte le nombre d'impulsions dans chaque niveau d'énergie : c'est le spectre du rayonnement.

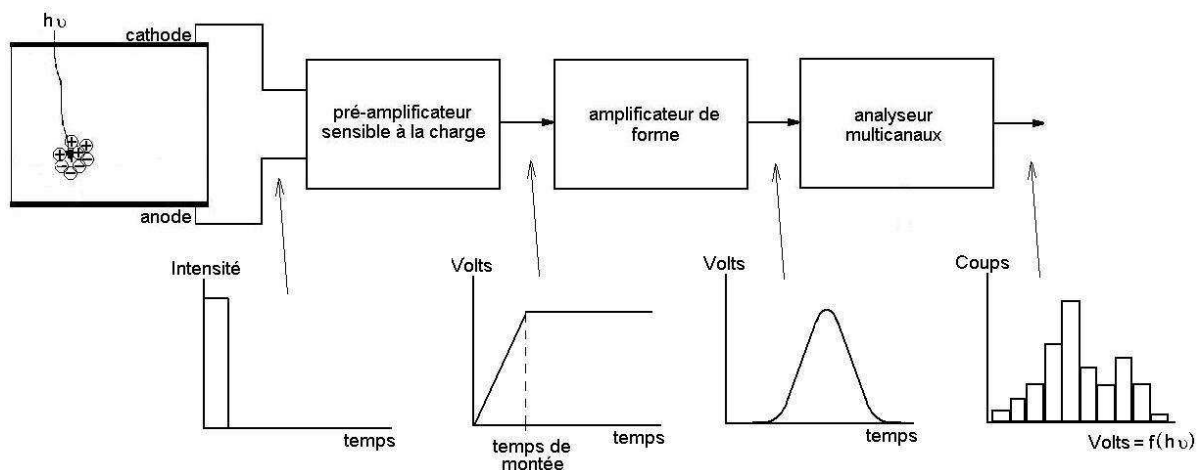


Figure 11. Traitement de signal dans un capteur spectrométrique. (D'après Redus, 2003)

Bien que théoriquement des photons ayant le même niveau d'énergie doivent être comptabilisés dans un même canal, dans la pratique cela n'est pas le cas en raison du bruit électronique, des artefacts dans la détection et de la variabilité statistique (Niemelä, 1995). Par exemple, une source mono énergétique, au lieu de générer une impulsion de Dirac, le dispositif de comptage génère une distribution gaussienne dont l'écart-type correspond à 0,424 la largeur de raie à mi-hauteur (*full width at mid height - FWHM*) (Miyajima *et al.*, 2002). La FWHM est utilisée couramment comme paramètre de la résolution énergétique d'un capteur.

3.3 Les détecteurs spectrométriques

3.3.1 Détecteurs à gaz

Les détecteurs à gaz sont constitués d'un volume hermétique de gaz, typiquement Xe ou Ar, soumis à une différence de potentiel continue. L'enveloppe constitue la cathode et un fil central joue le rôle de l'anode. Le rayonnement incident traverse une fine couche de Béryllium et ionise les atomes par interaction photoélectrique libérant ainsi des charges électriques que les électrodes collectent.

Selon l'amplitude de la différence de potentiel appliquée aux électrodes le comportement du détecteur à gaz peut être différent. Ainsi pour des tensions faibles, la quantité de charge capturée aux électrodes correspond au nombre d'ions produits et nous parlerons alors de « chambre d'ionisation ». Pour un potentiel électrique moyen, la charge détectée est amplifiée proportionnellement au nombre d'ions formés et nous parlerons alors d'un « compteur proportionnel ». Lorsque le potentiel est suffisamment important, une avalanche d'ions est générée dans le gaz et le signal de sortie n'est plus proportionnel à la quantité d'énergie déposée. Dans ce cas, le détecteur réagit comme un « compteur Geiger Muller ».

3.3.2 Détecteurs à semi-conducteur

Certains semi-conducteurs permettent de transformer des photons fortement énergétiques au moyen de l'effet photoélectrique en charges électriques directement récupérables. Les éléments chimiques les plus couramment utilisés sont le Germanium, le Cadmium, le Tellure et le Zinc sous la forme d'alliages comme CdTe (Tellure de Cadmium) ou CdZnTe (nommé couramment CZT).

Vue l'excellente résolution énergétique des capteurs de Germanium ultra pur (*High Purity Germanium* – HPGe), ils sont généralement utilisés pour les applications de spectrométrie de rayons X. Malheureusement, ils sont chers, encombrants et nécessitent de très basses températures pour leur fonctionnement (refroidissement à l'azote liquide). Par contre, les

diodes en CdTe et CZT sont plus économiques, petites et ne requièrent qu'un système de refroidissement thermoélectrique (éléments Peltier).

3.4 Artefacts dans les mesures

3.4.1 Empilement des impulsions

Lorsqu'un flux de photons trop important arrive sur le capteur, les impulsions générées par chacun d'eux commencent à s'empiler et le taux de photons comptés perd sa linéarité par rapport au taux de photons incidents. Ce phénomène est connu sous le nom de « *pile-up* ». Une vue globale de ce phénomène est présentée sur la figure 12 pour un capteur à semi-conducteur.

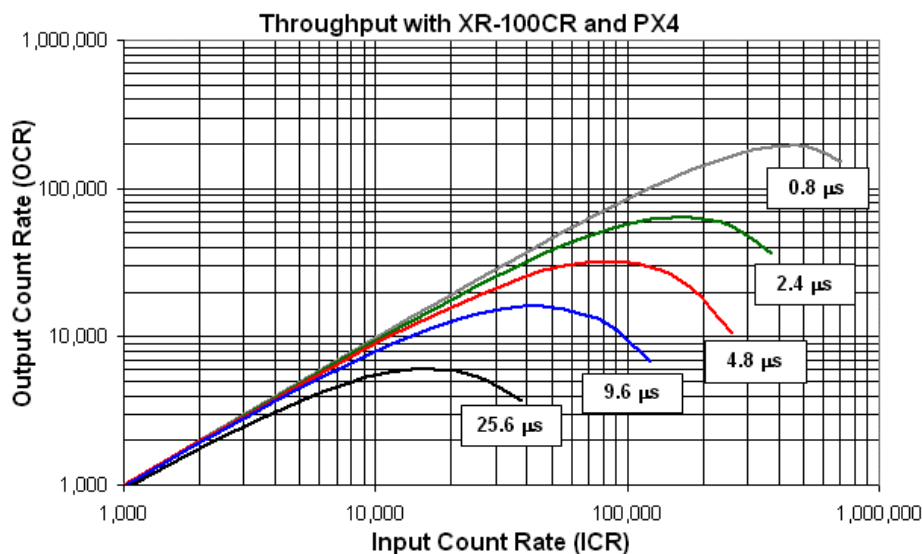


Figure 12. Perte de linéarité des mesures suite à l'empilement pour différents *shaping times*. (Brochure du capteur XR-100CR - Amptek, Inc. 2005).

3.4.2 Plateau Compton

A mesure que l'énergie des photons devient plus élevée, une partie moins importante des photons incidents réagira par effet photoélectrique. Dans le spectre issu d'une source mono énergétique nous verrons un « pic photoélectrique » (plus proprement dit : pic d'absorption totale) formé par les collisions photoélectriques des photons incidents (Fig. 13). A un niveau

moins énergétique, nous verrons un « plateau Compton » formé par les photons secondaires issus d'une ou plusieurs diffusions incohérentes ayant lieu dans le capteur.

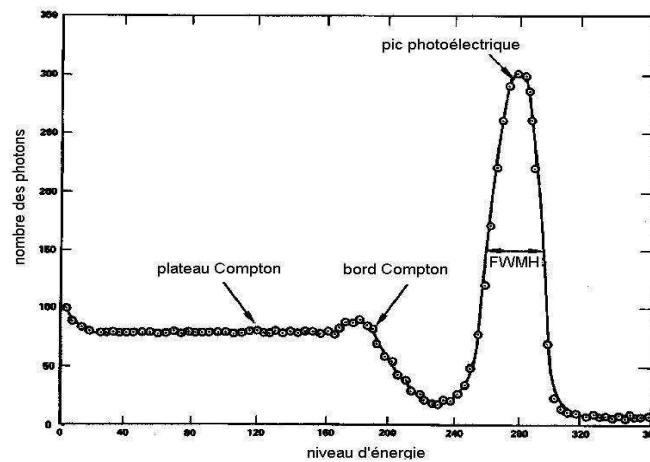


Figure 13. Pic photoélectrique avec sa largeur de raie à mi-hauteur (FWHM) et plateau Compton pour une source mono énergétique.

3.4.3 Pic d'échappement

Dans une interaction photoélectrique, le photon de fluorescence porte seulement une partie (E_f) de l'énergie totale dégagée par le photon incident ($h\nu$). Néanmoins, si le photon de fluorescence issu de l'interaction photoélectrique primaire réussit à s'échapper du capteur, la totalité de l'énergie incidente ne sera pas absorbée par le capteur. Un petit pic pourra apparaître à un niveau d'énergie égal à $h\nu - E_f$ (Papp et Campbell, 2001) (Fig. 14).

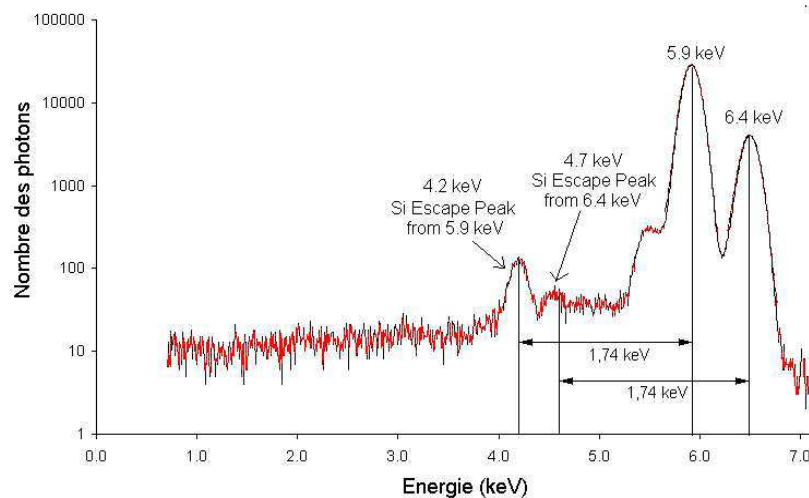


Figure 14. Pics d'échappement générés à partir raies K_α et K_β du Fer, E_f du Silicium est 1,74 keV (Adapté d'après la brochure du capteur XR-100CR d'Amptek, 2005).

3.4.4 Recombinaison des charges

L'interaction d'un photon avec le matériau semi-conducteur produit en moyenne une quantité de charges électriques (N) égale à :

$$N = E_0 / \varepsilon_{\text{pair}}$$

où :

E_0 : énergie du photon incident (keV),

$\varepsilon_{\text{pair}}$: énergie du couple électron/vacance du matériau (5 eV pour le CZT),

La récupération de ces charges se fait au moyen d'une différence de potentiel appliquée aux extrémités de la diode qui engendre un champ électrique presque homogène dans le milieu récepteur. Malheureusement, due aux imperfections dans la structure cristalline du matériau semi-conducteur, une partie des charges positives (trou ou vacance) sont re-combinées (piégés) juste après leur production (Ponpon et Siffert, 1995). Donc, souvent une proportion des vacances n'arrive pas jusqu'à l'anode. Il se produit une collection incomplète de charges. Cela implique la perte de proportionnalité entre l'énergie déposée par le photon et l'énergie estimée par l'électronique (Redus, 2003).

L'intensité du courant électrique engendrée par un photon détecté peut être calculée au moyen de la relation suivante :

$$I = Q N \frac{V}{d}$$

où :

Q : valeur de la charge électrique des porteurs ($1,6 \times 10^{-19}$ Coulombs),

V : vitesse des charges dans le matériau (cm s^{-1}),

d : distance de parcours des charges (cm).

La vitesse des charges est fortement dépendante de l'intensité du champ électrique appliqué à la diode. Pour pouvoir faire des comparaisons entre diodes soumises à différentes intensités du champ électrique, il est convenable, plutôt que de vitesse, de parler de « mobilité » des charges (μ) au sein du matériau semi-conducteur :

$$\mu = \frac{V}{\varepsilon} (cm^2 V^{-1} s^{-1})$$

où :

ε : intensité du champ électrique (Volts cm^{-1})

Pour des matériaux de la famille des CZT, la mobilité des électrons est de l'ordre de dix fois supérieure à celle des vacances (d'après Amptek). C'est-à-dire que, soumis à une intensité de champ électrique égale, les électrons voyagent dix fois plus rapidement vers la cathode que les vacances vers l'anode.

D'autre part, d'après Amptek, dans le CZT la durée de vie (τ) des électrons est environ 3×10^{-6} s et pour les vacances elle est de 5×10^{-8} s (environ 60 fois moins). Ces données, permettent de calculer le parcours libre moyen des charges (λ) ou « *mean free path* » dans le matériau, avant de disparaître par re-combinaisons :

$$\lambda = \mu \tau \varepsilon \quad (cm)$$

D'après cette expression, pour le cas des électrons, l'amplitude de leur parcours libre moyen est de 8,1 cm et dépasse largement la profondeur de la diode. Par contre, pour des vacances cette amplitude est de 0,012 cm, laquelle est inférieure à la profondeur de la diode (Redus, 2003).

Lorsque les diodes présentent une cathode au niveau de la surface, seules les vacances ayant remonté à la surface contribueront au signal (Fig. 15). Or, plus le photon incident sera énergétique, plus il aura tendance à interagir profondément avec le matériau sensible. Donc, les vacances générées souffriront plus de re-combinaisons. Cela dit, il semble évident que le capteur, à des énergies élevées, incrémentera sa tendance à effectuer une collection

incomplète de charges. Laquelle se traduit dans le spectre, comme un déplacement de photons énergétiques vers des niveaux plus faibles d'énergie (Matsumoto *et al.*, 2000 ; Redus, 2003 ; Miyajima *et al.*, 2002).

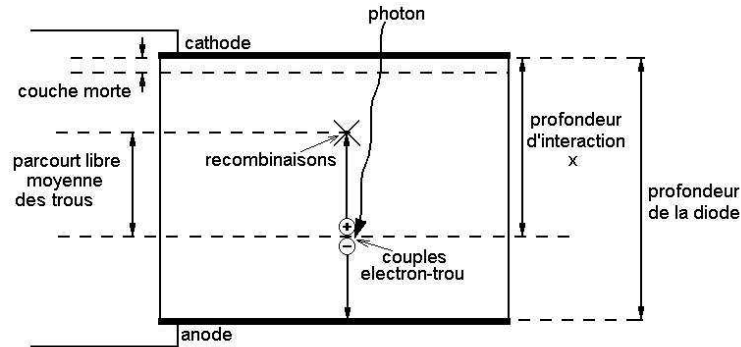


Figure 15. Phénomène de production des couples électron-trou et recombinaison des trous.
(D'après Matsumoto *et al.*, 2000).

Il existe un intense travail de recherche orienté à l'élimination ou à la réduction de la collection incomplète de charges. Deux types de méthodes sont envisageables : (a) amélioration de la géométrie du capteur et de la déposition du matériau sensible ou (b) traitements de signal spécifiques. La description du premier type de méthodes s'éloigne des prétentions de cette thèse. Par contre, nous décrivons le second type de méthodes aux paragraphes suivants.

Etant donné que les vacances ayant été créés profondément dans le capteur prendront plus de temps à remonter vers la cathode, nous pouvons en déduire que l'intégration fait par le pré-amplificateur aura tendance à se faire plus lentement. Cette pente dans l'intégration est connue sous le nom de « temps de montée » ou *Rise time*, (Fig. 11) et constitue un indicateur de la profondeur de l'interaction photoélectrique dans le capteur, conséquence de la probabilité de collection incomplète de charges.

La façon la plus simple de s'affranchir du problème de recombinaison des charges est de supprimer les impulsions ayant un temps de montée qui dépasse une limite préfixée (avec pour conséquence de sous-estimer le spectre à des énergies élevées). Cette méthode, souvent analogique, est connue comme *Rise Time Discrimination* (RTD). Or, des systèmes en développement, appelés méthodes biparamétriques permettent d'étudier la relation entre le temps de montée et l'amplitude du signal ou énergie déposée (Fig. 16). A partir du graphique,

par traitement numérique de signaux, il semble maintenant possible de corriger en temps réel une partie très importante de la re-combinaison des charges (Peyret *et al.*, 1999 ; Cardoso *et al.*, 2001).

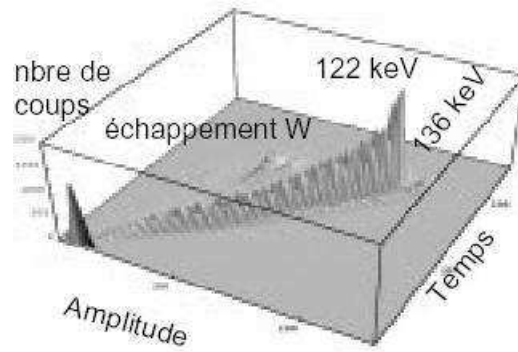


Figure 16. Vue en 3-D d'un spectre bi-paramétrique : amplitude d'impulsion et temps de montée.
(Peyret *et al.*, 1999).

4. Utilisation des rayons X pour l'étude du bois

4.1 Mesure de la densité

4.1.1 Par atténuation du rayonnement

Depuis la découverte des rayons X et les premiers clichés faits par Röntgen, la méthode d'atténuation ou transmission n'a pas cédé sa place comme la méthode d'exploitation la plus répandue des rayons X. Le calcul de la densité du bois se réalise au moyen de l'atténuation du faisceau tout au long de son parcours dans l'échantillon, selon :

$$\frac{I(E)}{I_o(E)} = e^{-\mu_b(E) \rho_b d}$$

où :

$\frac{I(E)}{I_o(E)}$: coefficient de transmission expérimental,

$\mu_b(E)$: coefficient d'atténuation massique de la matière ligneuse,

ρ_b : densité de la matière ligneuse,

d : épaisseur de l'échantillon.

Si l'on néglige les substances extractibles du bois, qui ne représentent qu'un faible pourcentage du poids total du bois, $\mu_b(E)$ peut être calculé à partir de ceux des constituants principaux : cellulose, hémicellulose et lignine (Polge, 1966). Le polyoxyméthylène (ou « Kemetal ») peut être utilisé pour calibrage, car sa densité et sa constitution atomique en terme de proportion des éléments constituant, est proche de celle de la matière ligneuse (Badel, 1999).

Cellulose : $C_6H_{12}O_6$

Kemetal : CH_2O

Pour déterminer la densité d'un point spécifique à l'intérieur d'un objet complexe, il faut obtenir un ensemble de signaux à différents angles d'exposition, appelés « projections » (Fig. 17). A partir de cet ensemble de projections, il est alors possible de remonter à l'information sur la propriété d'atténuation au point P. Le processus de traitement numérique est appelé « reconstruction », c'est le principe de la tomographie.

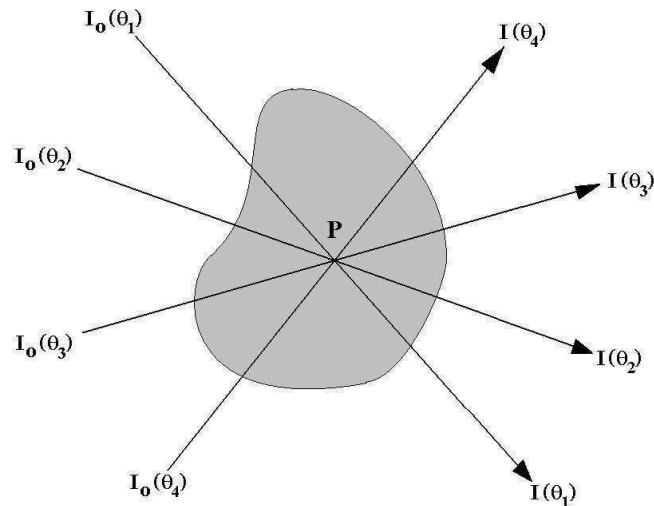


Figure 17. Atténuation du point P à différents angles d'exposition (projections).

4.1.2 Par diffusion Compton

L'intensité de la diffusion incohérente peut être utilisée comme mesure de la densité du matériau, car la section efficace incohérente est directement proportionnelle à la densité électronique du matériau. Cette méthode a été utilisée par Divos *et al.* (1996) pour des échantillons de bois. Ils ont utilisé un rayonnement gamma à 59 keV (Américium 241) pour réaliser une cartographie densitométrique par diffusion Compton dans une planche de bois (Fig. 18). Ces résultats présentent une modeste résolution spatiale, à cause de l'utilisation d'un collimateur de 1 cm de diamètre.

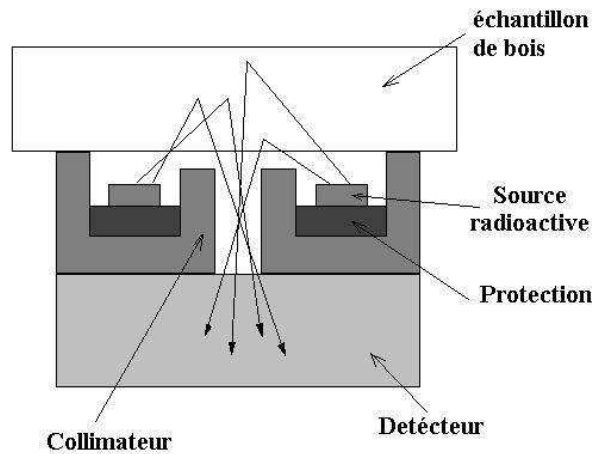


Figure 18. Schéma pour la mesure de la densité du bois par diffusion incohérente avec un angle supérieure à 90°. (D'après Divos *et al.* 1996).

4.2 Mesure de la teneur en eau

4.2.1 Par atténuation du rayonnement

La spectrométrie d'un faisceau X transmis est utilisée souvent pour l'observation de la migration d'eau (ou autres fluides) dans des matériaux poreux, tels que : le sol (Norel, 1965), le béton (Bentz et Hansen, 2000 ; Hu et Stroeven, 2003) ou le bois (Perré et Thiercelin, 2004). Si la densité du milieu poreux est connue, le calcul numérique des atténuations peut permettre de remonter à la teneur en eau (Davis *et al.*, 1993 ; Perré et Thiercelin, 1997 ; Hansen *et al.*, 1999), En revanche, si nous ne connaissons pas a priori la densité anhydre du matériau (le cas plus usuel), la mesure de la teneur en eau devient plus complexe.

L'absorptiométrie de rayons X quantifie l'augmentation de l'atténuation du faisceau, provoquée par l'eau présente dans l'échantillon. Ainsi, le calcul d'atténuation du matériau humide peut être réalisé en considérant l'échantillon comme un composant à deux phases avec des densités ρ_o pour la phase 1 et ρ_e pour la phase 2, selon :

$$\frac{I(E)}{I_o(E)} = e^{-[\mu_o(E) \rho_o d + \mu_e(E) \rho_e d]}$$

où :

$\frac{I(E)}{I_o(E)}$: coefficient de transmission pour le matériau humide,

$\mu_o(E)$: coefficient d'atténuation massique du matériau anhydre,

$\mu_e(E)$: coefficient d'atténuation massique de l'eau.

Il faut noter que le coefficient d'atténuation massique $\mu(E)$ apporte une information sur la constitution chimique d'un matériau. Ainsi, si deux matériaux sont suffisamment différents chimiquement, la courbe $\mu(E)$ qui résulte du mélange des deux peut être exploitée pour étudier la concentration de chacun d'eux. Par exemple, l'eau est constituée de 88,9% d'oxygène et de 11,1% d'hydrogène tandis que le bois est en moyenne constitué de 49% de carbone, 45% d'oxygène et 6% d'hydrogène. Ces valeurs conduisent à une légère différence entre les coefficients d'atténuation des deux milieux qui varie selon le niveau d'énergie photonique utilisée (Fig. 19).

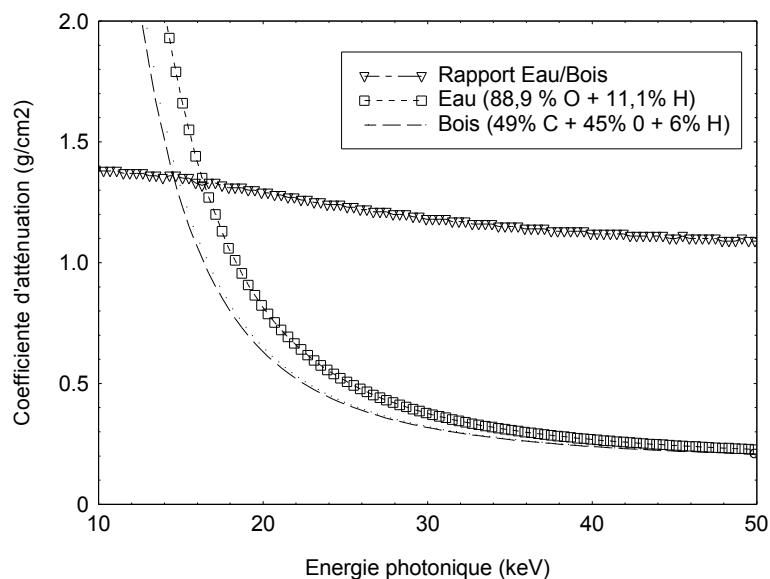


Figure 19. Coefficients d'atténuation massique de l'eau et du bois et rapport entre eux.

L'exploitation de la différence de ces coefficients d'atténuation massiques entre plusieurs phases mélangées constitue la base des méthodes pour l'identification simultanée des proportions de ces composantes. En effet, dans le champ médical, la méthode absorptiométrie à double énergie de rayons X (*dual-energy x-ray absorptiometry*, DEXA ou DXA) est intensément utilisée pour l'étude clinique de l'ostéo-densitométrie (Laskey et Phil, 1996 ;

Dinten *et al.*, 2001). Cette méthode a été étudiée pour la mesure de proportions de phases liquides dans la pétrochimie (Clarijs *et al.*, 1999), pour l'identification de la teneur en eau des sols (Oostrom et Dave, 1990 ; McBride et Miller, 1994 ; Bauters *et al.*, 2000 ; Schena *et al.*, 2002), pour l'estimation des proportions dans des matériaux composés, (Létang *et al.*, 2003), entre autres.

L'absorptiométrie à double énergie de rayons X est un cas particulier du MEXA (*multi-energy x-ray absorptiometry*). Elle consiste en des mesures du coefficient de transmission à deux énergies photoniques différentes en utilisant rayonnement mono énergétique (issu des sources radioactives) ou quasi- mono énergétique (issu du filtrage des faisceaux de rayons X).

Le principe consiste en un système à deux équations avec deux inconnues :

$$\bar{T} = \bar{M} \cdot \bar{\varphi}$$

La matrice T est issue des valeurs expérimentales des coefficients de transmission à deux énergies 1 et 2 différents. La matrice M est remplie des valeurs des coefficients d'atténuation massique pour chaque phase A et B à chaque énergie 1 et 2. La matrice des inconnues φ correspond à la masse surfacique (g cm^{-2}) de chaque phase.

$$T = \begin{vmatrix} -\ln(I_1 / I_{O1}) \\ -\ln(I_2 / I_{O2}) \end{vmatrix} \quad M = \begin{vmatrix} \mu_1^A & \mu_1^B \\ \mu_2^A & \mu_2^B \end{vmatrix} \quad \varphi = \begin{vmatrix} \rho^A L \\ \rho^B L \end{vmatrix}$$

La solution du système nécessite d'inverser la matrice M, ainsi :

$$\begin{vmatrix} t^A \\ t^B \end{vmatrix} = \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} \mu_2^B & -\mu_1^B \\ -\mu_2^A & \mu_1^A \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} -\ln(T_1) \\ -\ln(T_2) \end{vmatrix}$$

$$t^A = \frac{\mu_1^B \ln T_2 - \mu_2^B \ln T_1}{\Delta}$$

$$t^B = \frac{\mu_2^A \ln T_1 - \mu_1^A \ln T_2}{\Delta}$$

$$\Delta = \det(M) = \mu_1^A \mu_2^B - \mu_2^A \mu_1^B$$

Le calcul de t^A et t^B est impossible si la matrice de coefficients d'atténuation devient singulière (c'est-à-dire que $\Delta = 0$). Pour obtenir une bonne stabilité de l'estimation sur t^A et t^B , il est nécessaire que les pentes des courbes d'atténuation de deux phases soient les plus orthogonales possibles.

La méthode bi-énergétique demande deux conditions : deux phases avec des coefficients d'atténuation suffisamment distincts et un spectre énergétique bi-modal. La première condition appartient à la nature du mélange étudié (bois et eau, sol et eau, os et tissu, etc.). La seconde condition peut être remplie en utilisant deux sources radioactives. Néanmoins, cela devient difficile en utilisant une source de rayons X poly énergétique. Cependant des méthodes d'obtention d'un spectre approximativement bi-énergétique ont été décrites (Shi, 2000).

4.2.2 Par diffusion cohérente

Le phénomène d'interférence coopérative du rayonnement X diffusé de façon élastique est couramment exploité pour étudier la structure des matériaux cristallins. Or, un matériau amorphe tel que l'eau est capable aussi de produire un pic de diffusion cohérente de rayons X. Cette capacité s'explique car bien que les molécules d'eau se déplacent les unes par rapport aux autres, l'écartement moyen entre molécules est constant. Cette homogénéité se traduit par une intensité plus grande pour un momentum tranfer entre 1,6 et 2,2 nm⁻¹.

Key (1999) a exploré la faisabilité d'utiliser les signaux de diffusion cohérente pour estimer la proportion d'eau dans une émulsion à deux phases (l'eau et le pétrole). Pour cela, l'auteur propose un rapport entre les signaux issus de la plage énergétique X et de la plage énergétique Y, mesurés à un angle de diffusion de 5° (Fig. 20).

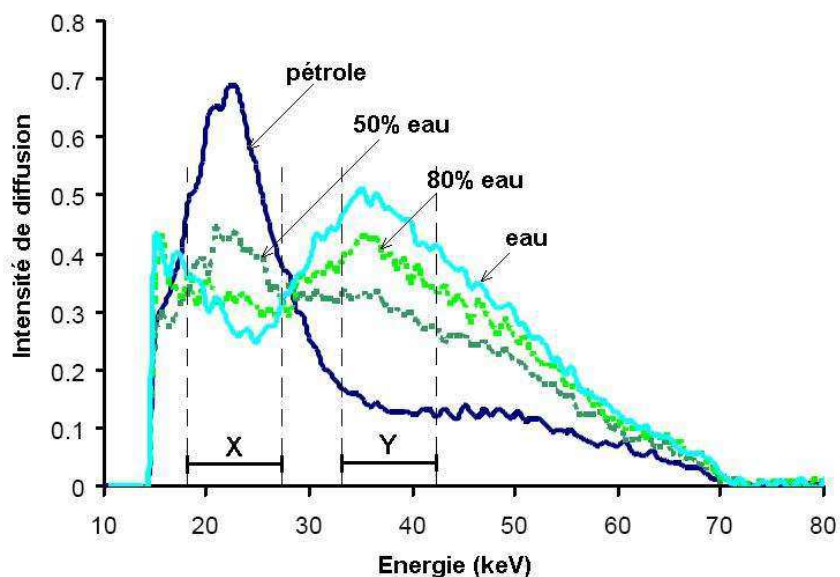


Figure 20. Intensité de diffusion à 5° pour deux matériaux amorphes tel que l'eau et le pétrole. (Adapté d'après Key, 1999)

Or, en mesurant le rayonnement diffusé à un angle θ de $10,5^\circ$, ce pic se place entre 20 et 35 keV (Fig. 21). Pour cette même configuration de mesure, le bois présentera un pic d'intensité lié au plan cristallin (002) autour de 17,5 keV. Or, un tube de rayons X avec anticathode en Molybdène présente sa raie $K\alpha$ à 17,5 keV. Par conséquent, dans un échantillon en bois nous pouvons envisager l'obtention d'un spectre de diffusion formé pour deux zones d'énergie : la première associée à la phase cristalline, et la seconde associée à l'eau contenue.

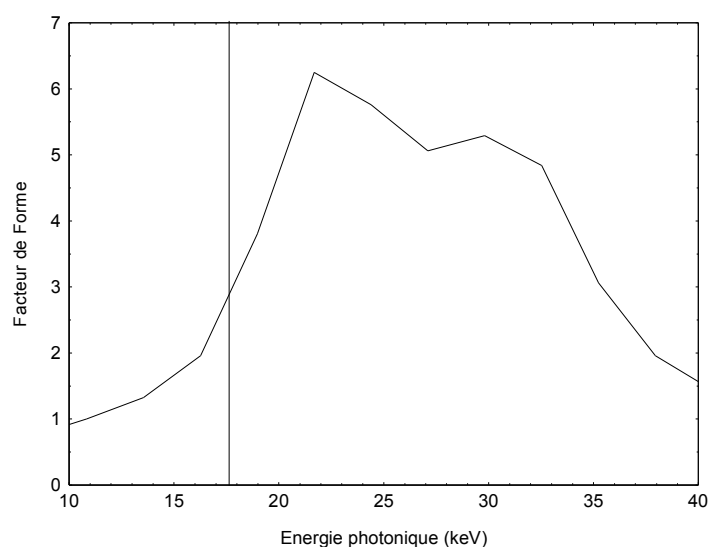


Figure 21. Pic de diffusion de l'eau et niveau énergie pour la diffraction du plan (002) à $10,5^\circ$ (diffusion de l'eau a été obtenu d'après Johns *et al.*, 2002).

4.2.3 Par diffusion Compton

De la même façon que pour les méthodes par atténuation, nous pouvons envisager l'exploitation de la diffusion incohérente pour calculer les densités de deux phases simultanément à travers sa différence de densité électronique.

La densité électronique d'un matériau est proportionnelle au numéro atomique effectif (Z_{eff}).

Le Z_{eff} d'un composant chimique est un concept complexe qui tente de représenter le nombre d'électrons par atome. Dans la littérature, il existe plusieurs façons de calculer le Z_{eff} selon la manière de pondérer les contributions de chaque élément chimique. Différentes formules ont été rassemblées par Duvauchelle *et al.* (1999) :

Tableau II.1. Formules pour le calcul du numéro atomique effectif.

Tsaï et Cho	Manninen	Schätzler	Puumalainen
$Z_{eff} = \left[\sum \alpha_i^e Z_i^m \right]^{1/m}$	$Z_{eff} = \left[\frac{\sum \alpha_i^a Z_i^p}{\sum \alpha_i^a Z_i^m} \right]^{1/(p-m)}$	$Z_{eff} = \sum w_i Z_i$	$Z_{eff} = \sum \alpha_i^a Z_i$
$\alpha_i^e = \frac{(w_i / A_i) Z_i}{\sum (w_i / A_i) Z_i}$	$\alpha_i^a = \frac{(w_i / A_i)}{\sum (w_i / A_i)}$		$\alpha_i^a = \frac{(w_i / A_i)}{\sum (w_i / A_i)}$

En utilisant les équations du tableau II.1, il est possible de calculer les valeurs de Z_{eff} pour l'eau et pour le bois. A partir de ces valeurs nous avons calculé l'écart entre les Z_{eff} du bois et de l'eau. Les résultats sont présentés dans la Table II.2.

Tableau II.2. Numéro atomique effectif pour l'eau et le bois selon les équations du tableau II.1 et écart entre les Z_{eff} .

Méthode	Tsaï	et Mannine	Schätzler	Puumalaine
	Cho	n		n
Eau (89,9% O +11,1%H)	7,54	7,17	7,22	3,33
Bois (45%O + 49%C + 6%H)	6,93	6,63	6,60	4,12
Ecart ($Z^{eau} - Z^{bois}$) / Z^{eau}	8,09%	7,53%	8,59%	-23,72%

En raison de la proximité des Z_{eff} des deux milieux, la possibilité de mesurer la teneur en eau du bois par une méthode de diffusion incohérente se révèle difficilement envisageable d'un point de vue expérimental.

4.3 Mesure de l'angle de microfibrilles par diffraction de rayons X

Au premier chapitre nous avons vu que la méthode de diffusion à large angle génère un diagramme de diffraction qui peut être interprétée en fonction des plans de symétrie de la fibrille élémentaire (Fig. 22). Maintenant, nous étudierons en détails les conditions géométriques qui déterminent la forme du diagramme de diffraction pour les plans (002) et (040).

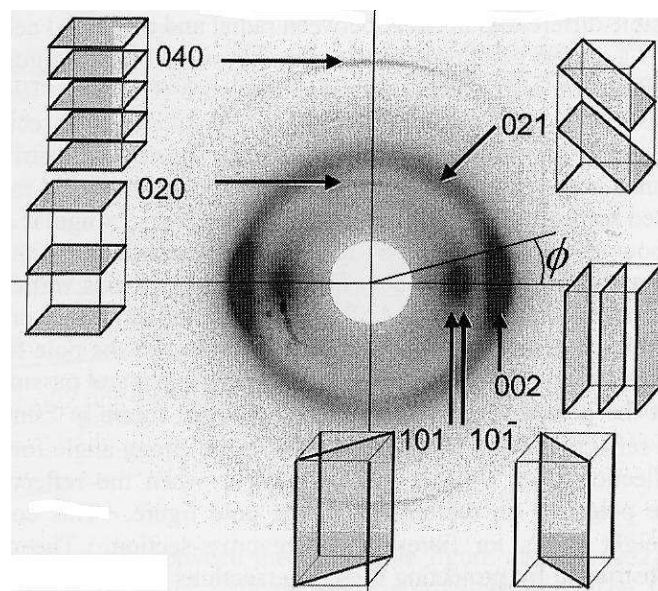


Figure 22. Diagramme 2-D de diffraction des plans cristallins de la cellulose (Evans, 1997).

4.3.1 Conditions de diffraction du plan (002)

Le plan (002) est parallèle à l'axe de la microfibrille. Pour ce plan, la diffraction d'un faisceau de rayons X issu de la raie $K\alpha$ du Cuivre (Annexe1) se fait suivant un angle 2θ de 23° environ (Cave, 1997a). Ainsi, en utilisant l'équation de Bragg, nous pouvons calculer que ce plan cristallin présente une distance entre couches atomiques de 0,39 nm.

La figure 23, présente la condition géométrique nécessaire pour l'obtention de diffraction à partir d'un plan cristallin parallèle à l'axe des microfibrilles. Ainsi, le vecteur \vec{b} représente la direction d'une microfibrille et le vecteur \vec{p} représente la normale au plan cristallin. Il faut noter que l'angle α prend en compte la disposition en spirale des microfibrilles dans la paroi cellulaire. Ainsi, par simple trigonométrie nous pouvons établir la relation suivante :

$$\vec{b} = \begin{pmatrix} \sin(\mu) \cos(\alpha) \\ \sin(\mu) \sin(\alpha) \\ \cos(\mu) \end{pmatrix}$$

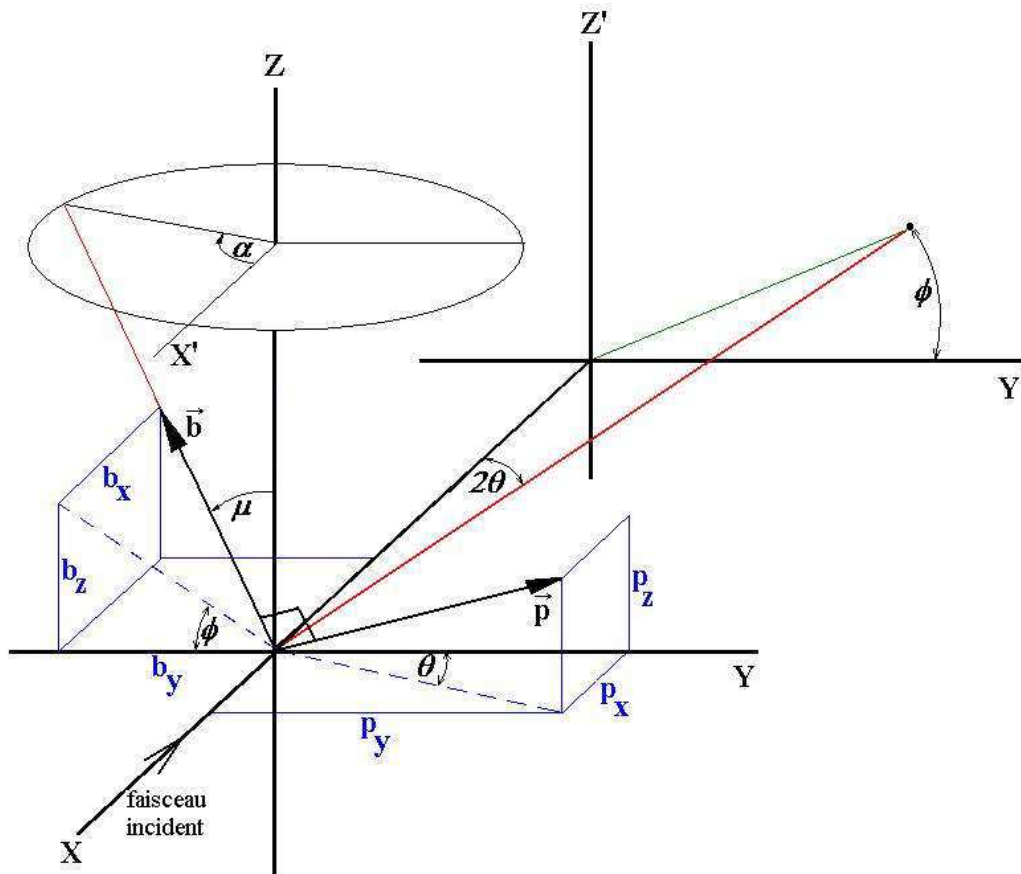


Figure 23. Conditions géométriques de la diffraction du plan (002). θ est angle de Bragg, α est l'angle décrit entre le faisceau incident et la surface de la paroi cellulaire, ϕ est l'angle azimutal où se place le faisceau diffracté et μ est l'AMF ou la pente de la microfibrille par rapport à l'axe cellulaire.

La condition géométrique de cette diffraction a été établie en 1966 par Cave (cité par Verrill *et al.*, 2001). Elle est connue sous le nom « d'équation de Cave » (dont l'obtention a été détaillé en Annexe 2) et implique la relation suivante :

$$\tan(\theta)\cos(\alpha) + \sin(\alpha)\cos(\phi) + \cot(\mu)\sin(\phi) = 0$$

La solution algébrique à cette équation (détaillée en Annexe 3), permet de calculer l'angle azimutal (ϕ) qui détermine la position où le faisceau diffracté sera la plus intense :

$$\cos(\phi) = \frac{-\tan(\theta)\sin(2\alpha) \pm \sqrt{\tan^2(\theta)\sin^2(2\alpha) - 4[\sin^2(\alpha) + \cot^2(\mu)][\tan^2(\theta)\cos^2(\alpha) - \cot^2(\mu)]}}{2\sin^2(\alpha) + 2\cot^2(\mu)}$$

4.3.2 Conditions de diffraction du plan (040)

Le plan (040) est perpendiculaire à l'axe de la microfibrille. Pour ce plan, la diffraction d'un faisceau de rayons X issu de la raie $K\alpha$ du Cuivre se fait suivant un angle 2θ de 34° environ (Cave, 1997a). Ainsi, nous pouvons calculer que ce plan cristallin présente une distance entre couches atomiques de 0,26 nm. De même qu'un faisceau Mo $K\alpha$ se diffracte à 2θ de 16° environ.

Comme le plan (040) est perpendiculaire à la direction de la microfibrille, les vecteurs \vec{b} et \vec{p} se superposent ; ainsi, la condition de diffraction est remplie seulement pour des conditions très restrictives.

La conditions de Bragg établit que : $b_x = p_x = \sin(\theta)$

Par définition de l'AMF : $b_z = p_z = \cos(\mu)$

Par définition du vecteur unitaire : $b_y = p_y = \sqrt{\cos^2(\theta) - \cos^2(\mu)} = \sin(\mu)\sin(\alpha)$

Ainsi, le point de diffraction à un angle azimutal ϕ dans le cercle 2θ s'obtient suivant la relation :

$$\tan(\phi) = \frac{p_z}{p_y} = \frac{\cos(\mu)}{\sqrt{\cos^2(\theta) - \cos^2(\mu)}} \quad \text{pour une orientation de paroi qui doit remplir la}$$

condition :

$$\sin(\alpha) = \frac{\sqrt{\cos^2(\theta) - \cos^2(\mu)}}{\sin(\mu)}$$

La solution décrite correspond à l'intersection entre deux cônes définis par les angles θ et μ autour de l'axe Z et X respectivement, selon la figure 24.

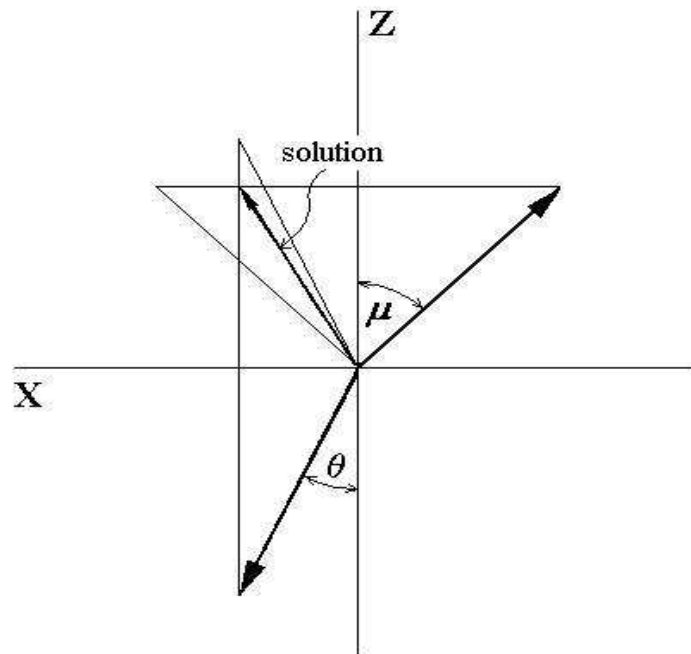


Figure 24. Intersection entre deux cônes.

Lorsque $\mu < \theta$ l'intersection entre les deux cônes devient impossible et la solution apporte un résultat imaginaire. Si $\mu = \theta$ le résultat pour ϕ se place à un angle de 90° ou 270° avec un angle de rotation α de 0° ou 180° (Fig. 22).

Si ces contraintes sont remplies, l'AMF s'obtient par simple calcul à partir de ϕ . Néanmoins, ce signal est extrêmement faible. Par ailleurs, ce profil est facilement pollué par la diffraction d'autres plans cristallins moins importants (Cave, 1997a ; Cave et Robinson, 1997).

4.3.3 Approches pour l'estimation de l'AMF

En utilisant la solution de l'équation de Cave, différents auteurs (Evans, 1997 ; Verrill *et al.*, 2001) ont présenté une série de simulations de profils de diffraction en fonction de l'orientation relative (α) des cellules carrés (Fig. 25). Les profils résultants sont complexes et ils ne sont pas toujours symétriques.

Vu la complexité de la relation entre le profil de diffraction et l'AMF, sont utilisées des relations empiriques entre l'AMF et la largeur azimutal du pic généré par le plan (002). Ainsi, on trouve dans la littérature les relations empiriques suivantes :

$$\mu = 0,6 \times T \quad \text{Meylan (1967) cité par Kretschmann *et al.*, (1997),}$$

$$\mu = Q \quad \text{Evans *et al.* (1996),}$$

$$\mu = 0,8 \times 0,6 \times 2\sigma \quad \text{Verrill *et al.* (2001),}$$

où :

T : mi-largeur à la base du pic,

Q : mi-largeur au « point d'inflexion » du pic,

σ : écart type du pic.

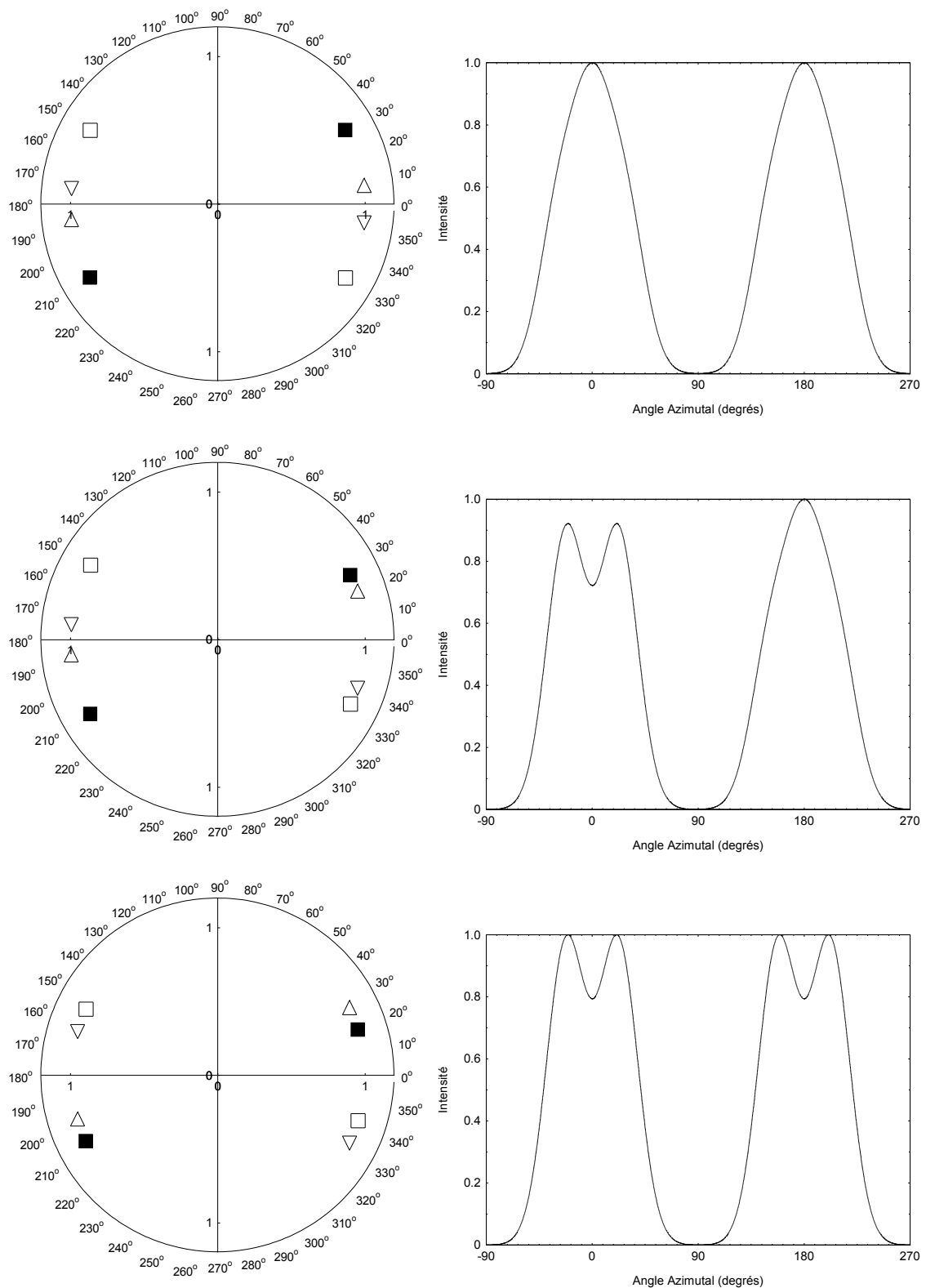


Figure 25. Profils de diffraction générés pour des cellules carrées dans 3 orientations différentes ($\alpha=0^\circ$, 22.5° et 45°) (pour un AMF égal à 30°).

■ : paroi frontale □ : paroi postérieure ▲ : paroi latérale droite ▽ : paroi latérale gauche

(Adapté d'après Verrill *et al.*, 2001).

En utilisant une approche semi-analytique complexe, Evans (1999) a retouché la relation entre la largeur du pic et l'AMF au moyen de l'équation suivante :

$$S^2 \approx \frac{1}{2} \mu^2 + \sigma_{mult}^2 + \sigma_{addit}^2$$

où :

S^2 : variance du profil de diffraction,

σ_{mult}^2 : variance multiplicative de l'AMF,

σ_{addit}^2 : variance additive de l'AMF.

Par connaissances empiriques l'auteur a établi que σ_{mult} suit la relation $0,333\mu$ et que σ_{addit} varie dans la plage de 6 à 10 degrés. Or, pour ces conditions μ est calculé suivant la relation :

$$\mu = 1,28 \sqrt{S^2 - \sigma_{addit}^2}$$

La variance S^2 se calcule pour chacun des deux pics selon :

$$S^2 = \frac{\int_a^b (\phi - \bar{\phi})^2 I(\phi) d\phi}{\int_a^b I(\phi) d\phi}$$

avec :

$$\bar{\phi} = \frac{\int_a^b \phi I(\phi) d\phi}{\int_a^b I(\phi) d\phi}$$

où :

a, b : plage de -90° à 90° pour un pic et de 90° à 270° pour l'autre pic

$I(\phi)$: intensité du profil

5. Conclusion et Perspectives

Au long de ce deuxième et dernier chapitre bibliographique nous avons décrit des notions de physique des rayons X, la technologie des détecteurs et le contexte théorique pour appliquer les rayons X à l'évaluation non destructive de certaines propriétés du bois, tels que la densité, la teneur en eau et l'angle de microfibrilles.

Nous avons montré que lorsque la densité d'une des phases est connue d'avance, le calcul de proportion des phases peut être réalisé par méthode d'atténuation. Pour le cas du bois, si nous connaissons *a priori* sa densité anhydre, il semble possible de remonter à la teneur en eau par calcul numérique des atténuations. Nous consacrerons le troisième chapitre de cette thèse à l'implémentation « cartographique » d'une méthode de ce type. Ainsi, nous présenterons un algorithme numérique pour le calcul et le suivi de la teneur en eau du bois au cours d'un essai de séchage. Pour cela, nous utiliserons des échantillons à taille presque réelle, en utilisant un appareillage expérimental de conception tout à fait innovante et pour des conditions d'opération exceptionnelles.

Lorsque la densité de l'échantillon du bois n'est pas connue d'avance, l'estimation simultanée des proportions des phases (bois anhydre et eau), constitue un enjeu qui mérite d'être étudié. Ainsi, au quatrième chapitre nous présenterons une méthode qui repose non sur un spectre bi-énergétique (tel que DEXA), mais sur un spectre poly-énergétique directement issu d'un tube de rayons X. En effet, il nous semble que le spectre continu (vu généralement comme un problème), peut offrir une richesse d'information exploitable par techniques numériques dans l'analyse spectrométrique. Vis à vis de la forte exigence que nous allons imposer à notre chaîne de mesures, dans le chapitre IV nous serons obligés de ré-aborder les sujets décrits ici, tels que : la variabilité statistique du rayonnement et certains artefacts de mesure.

D'autre part, nous avons montré que la diffraction des rayons X apporte une information précieuse de la qualité du bois : l'AMF. Au cinquième chapitre de thèse nous aborderons la problématique de sa mesure. Nous ferons une analyse critique des méthodes actuelles pour l'estimation de ce paramètre au moyen de simulations numériques. Nous essayerons ensuite d'explorer une voie expérimentale et théorique, mais surtout, moins empirique que les méthodes actuelles pour aborder le sujet.

Enfin, grâce au bagage apporté par les chapitres III, IV et V dans les méthodes par atténuation et diffraction du rayonnement, au dernier chapitre nous retournerons au sujet de la mesure de teneur en eau du bois. Cette fois nous aborderons le problème en utilisant des connaissances acquises par rapport à la diffraction de la phase cristalline du bois pour l'exploitation de la diffraction d'une phase amorphe constituée principalement d'eau. Dans ce chapitre nous décrivons le montage expérimental innovant qui a été nécessaire pour mettre en place cette nouvelle démarche.

ANNEXE 1

Transitions et bords pour quelques éléments chimiques (keV)

Z	Symbole	Transitions				Bords		
		K α 1	K β 1	L α 1	L β 1	K	L3-L2-L1	M5-M4-M3-M2-M1
1	H	-	-	-	-	-	-	-
2	He	-	-	-	-	-	-	-
3	Li	0,052	-	-	-	-	-	-
4	Be	0,110	-	-	-	-	-	-
5	B	0,185	-	-	-	-	-	-
6	C	0,282	-	-	-	-	-	-
7	N	0,392	-	-	-	-	-	-
8	O	0,526	-	-	-	-	-	-
9	F	0,677	-	-	-	-	-	-
10	Ne	0,851	-	-	-	-	-	-
11	Na	1,04	1,07	-	-	1,07	-	-
12	Mg	1,25	1,30	-	-	1,30	-	-
13	Al	1,49	1,55	-	-	1,56	-	-
14	Si	1,74	1,83	-	-	1,84	-	-
15	P	2,02	2,14	-	-	2,15	-	-
16	S	2,31	2,46	-	-	2,47	-	-
17	Cl	2,62	2,82	-	-	2,82	-	-
18	Ar	2,96	3,19	-	-	3,20	-	-
19	K	3,31	3,59	-	-	3,61	-	-
20	Ca	3,69	4,01	0,34	-	4,04	-	-
21	Sc	4,09	4,46	0,40	-	4,49	-	-
22	Ti	4,51	4,93	0,45	0,46	4,97	-	-
23	V	4,95	5,43	0,51	0,52	5,47	-	-
24	Cr	5,41	5,43	0,57	0,58	5,99	-	-
25	Mn	5,90	6,49	0,64	0,65	6,54	-	-
26	Fe	6,40	7,06	0,70	0,72	7,11	-	-
27	Co	6,93	7,65	0,78	0,79	7,71	-	-
28	Ni	7,48	8,26	0,85	0,87	8,33	1,01	-
29	Cu	8,05	8,90	0,93	0,95	8,98	1,10	-
30	Zn	8,64	9,57	1,01	1,03	9,66	1,02-1,04-1,19	-
32	Ge	9,89	10,98	1,19	1,21	11,10	1,22-1,25-1,41	-
41	Nb	16,61	18,62	2,17	2,26	18,99	2,37-2,46-2,70	-
42	Mo	17,48	19,61	2,29	2,40	20,00	2,52-2,63-2,87	-
48	Cd	23,17	26,09	3,13	3,32	26,71	3,54-3,73-4,02	-
49	In	24,21	27,27	3,29	3,49	27,94	3,73-3,94-4,24	-
52	Te	27,47	30,99	3,77	4,03	31,81	4,34-4,61-4,94	1,01
53	I	28,61	32,29	3,94	4,22	33,17	4,56-4,85-5,19	1,07
74	W	59,31	67,23	8,40	9,67	69,52	10,21-11,54-12,10	1,81-1,87-2,28-2,57-2,82
79	Au	68,79	77,97	9,71	11,44	80,72	11,92-13,73-14,35	2,21-2,29-2,74-3,15-3,42
82	Pb	74,96	84,92	10,55	12,61	88,00	13,03-15,20-15,86	2,48-2,59-3,07-3,55-3,85

ANNEXE 2

Obtention de l'équation de Cave

Soit : \vec{b} : vecteur que détermine la direction des microfibrilles

$$\vec{b} = \begin{pmatrix} \sin(\mu) \cos(\alpha) \\ \sin(\mu) \sin(\alpha) \\ \cos(\mu) \end{pmatrix}$$

\vec{p} : vecteur normal au plan cristallin (002), avec une orientation a priori inconnue.

$$\vec{p} = (p_1 \quad p_2 \quad p_3)$$

Pour connaître l'angle azimutal ϕ qui concentre la diffraction du plan cristallin (002) il est nécessaire d'obtenir le vecteur \vec{p} . Il existe deux conditions qui nous permettent de le faire.

Comme première condition, le plan cristallin (002) doit être aligné à un angle θ par rapport au faisceau incident (condition de Bragg).

$$p_1 = \cos(90^\circ - \theta) = \sin(\theta)$$

Comme seconde condition, la normale au plan cristallin (002) doit être perpendiculaire aux microfibrilles, c'est-à-dire, \vec{b} et \vec{p} doivent être des vecteurs orthogonaux.

$$\vec{p} \cdot \vec{b} = 0$$

Ainsi :

$$(p_1 \quad p_2 \quad p_3) \begin{pmatrix} \sin(\mu) \cos(\alpha) \\ \sin(\mu) \sin(\alpha) \\ \cos(\mu) \end{pmatrix} = 0$$

$$p_1 \sin(\mu) \cos(\alpha) + p_2 \sin(\mu) \sin(\alpha) + p_3 \cos(\mu) = 0 \quad [1]$$

Par définition \vec{p} doit satisfaire à:

$$p_1^2 + p_2^2 + p_3^2 = 1$$

Ainsi :

$$\sin^2(\theta) + p_2^2 + p_3^2 = 1$$

Par l'identité trigonométrique : $\sin^2(\theta) + \cos^2(\theta) = 1$, nous pouvons obtenir :

$$p_2^2 + p_3^2 = \cos^2(\theta)$$

C'est l'équation d'un cercle dans le plan YZ avec un rayon égal à $\cos(\theta)$. Donc, pour un angle ϕ quelconque, ses projections sont :

$$p_2 = \cos(\theta) \cos(\phi)$$

$$p_3 = \cos(\theta) \sin(\phi)$$

Après remplacement des expressions de p_1 , p_2 et p_3 dans l'équation 1 nous pouvons arriver à :

$$\sin(\theta) \sin(\mu) \cos(\alpha) + \cos(\theta) \cos(\phi) \sin(\mu) \sin(\alpha) + \cos(\theta) \sin(\phi) \cos(\mu) = 0$$

En divisant par $\cos(\theta) \sin(\mu)$, nous arrivons à l'équation de Cave :

$$\tan(\theta) \cos(\alpha) + \sin(\alpha) \cos(\phi) + \cot(\mu) \sin(\phi) = 0$$

ANNEXE 3

Solution à l'équation de Cave

L'idée consiste à trouver la valeur de ϕ pour des valeurs données de α , μ et θ .

Nous modifions l'équation de Cave en utilisant l'identité $\sin^2(\phi) + \cos^2(\phi) = 1$ de façon à obtenir la relation suivante :

$$\tan(\theta) \cos(\alpha) + \sin(\alpha) \cos(\phi) + \cot(\mu) \sqrt{1 - \cos^2(\phi)} = 0$$

Ainsi :

$$\sin(\alpha) \cos(\phi) + \tan(\theta) \cos(\alpha) = -\cot(\mu) \sqrt{1 - \cos^2(\phi)}$$

En élevant au carré :

$$\sin^2(\alpha) \cos^2(\phi) + 2 \sin(\alpha) \cos(\phi) \tan(\theta) \cos(\alpha) + \tan^2(\theta) \cos^2(\alpha) = \cot^2(\mu) (1 - \cos^2(\phi))$$

\Leftrightarrow

$$\sin^2(\alpha) \cos^2(\phi) + 2 \sin(\alpha) \cos(\phi) \tan(\theta) \cos(\alpha) + \tan^2(\theta) \cos^2(\alpha) - \cot^2(\mu) + \cot^2(\mu) \cos^2(\phi) = 0$$

\Leftrightarrow

$$\cos^2(\phi) [\sin^2(\alpha) + \cot^2(\mu)] + \cos(\phi) [2 \sin(\alpha) \tan(\theta) \cos(\alpha)] + \tan^2(\theta) \cos^2(\alpha) - \cot^2(\mu) = 0$$

Comme : $2 \sin(\alpha) \cos(\alpha) = \sin(2\alpha)$, nous obtenons l'équation suivante :

$$\cos^2(\phi) [\sin^2(\alpha) + \cot^2(\mu)] + \cos(\phi) [\sin(2\alpha) \tan(\theta)] + \tan^2(\theta) \cos^2(\alpha) - \cot^2(\mu) = 0$$

La solution s'obtient par la résolution d'une équation quadratique, avec :

$$a = \sin^2(\alpha) + \cot^2(\mu) \quad b = \sin(2\alpha) \tan(\theta) \quad c = \tan^2(\theta) \cos^2(\alpha) - \cot^2(\mu)$$

Chapitre III

Détermination de la teneur en eau du bois par atténuation de rayons X : Application au séchage des avivés

Introduction

Etudier l'évolution de la teneur en eau des échantillons au cours du séchage est un enjeu important pour les sciences du bois. La perte de teneur en eau au cours du temps peut être suivie simplement par différence gravimétrique, cependant l'information reste globale. L'utilisation d'une méthode sans contact et avec une haute résolution spatiale est très utile pour la compréhension et la modélisation du processus de séchage du bois.

Dans une pile de séchage, les avivés sont placés bord à bord sur un même lit horizontal de telle sorte que la migration d'eau se fait suivant l'épaisseur de l'avivé. Par conséquent, des différences importantes de teneur en eau peuvent apparaître selon cette direction. L'acquisition des profils de teneur en eau doit être réalisée dans l'épaisseur car celle-ci correspond au paramètre géométrique de l'avivé qui a le plus d'influence sur la rapidité et la qualité de séchage.

Au deuxième chapitre nous avons vu que la manière la plus simple de déterminer la teneur en eau par rayons X consiste à quantifier la réduction de l'atténuation du faisceau provoquée par la perte d'eau dans l'échantillon. Néanmoins, pour appliquer cette démarche, il est nécessaire de connaître sa densité anhydre. De plus, vu l'hétérogénéité spatiale de la densité du bois, il est nécessaire d'obtenir une « cartographie anhydre » dans l'épaisseur de l'avivé.

Nous avons développé une démarche expérimentale consistant en un balayage périodique par un faisceau X, des différents points de l'échantillon durant le séchage et à l'enregistrement des coefficients de transmission (I/I_0) pour chaque position.

Le processus de séchage se déroule jusqu'à ce que les coefficients de transmission de l'échantillon deviennent stables, ce qui traduit l'approche de la teneur en eau d'équilibre pour l'échantillon de bois. Pour plus de précision, nous avons établi un profil de teneur en eau par méthode destructive (découpe en lamelles dans l'épaisseur) pour cet état final.

A partir de ce profil de teneur en eau et du profil de densité anhydre nous avons pu obtenir le profil de teneur en eau de l'échantillon à un instant quelconque du processus de séchage, en utilisant une technique de calcul inverse.

Ces expériences ont été réalisées en collaboration avec R. Rémond, doctorant au LERMaB qui a soutenu sa thèse en décembre 2004, et qui a travaillé sur le séchage des avivés des résineux de fortes épaisseurs.

1. Description de la méthode

1.1 Formulation physique

Pour un faisceau mono-énergétique d'énergie E , l'atténuation par un échantillon de bois anhydre suit une loi exponentielle :

$$\frac{I'(E)}{I_o(E)} = e^{-\mu_o(E) \rho_o d}$$

où :

$\frac{I'(E)}{I_o(E)}$: coefficient de transmission pour le bois anhydre,

$\mu_o(E)$: coefficient d'atténuation massique du bois anhydre,

d : parcours du faisceau dans l'échantillon (épaisseur de l'échantillon).

Le calcul d'atténuation du bois humide peut être réalisé en considérant l'échantillon comme un composant à deux phases avec des densités ρ_o pour la phase 1 et ρ_e pour la phase 2, selon :

$$\frac{I(E)}{I_o(E)} = e^{-[\mu_o(E) \rho_o d + \mu_e(E) \rho_e d]}$$

où :

$\frac{I(E)}{I_o(E)}$: coefficient de transmission pour le bois humide,

$\mu_e(E)$: coefficient d'atténuation massique de l'eau.

Le produit $\rho_o d$ ($g\ cm^{-2}$) correspond à la masse surfacique du bois anhydre, tandis que le produit $\rho_e d$ correspond à la masse surfacique de l'eau contenue dans l'échantillon. La teneur

en eau (TH) correspond au rapport entre ces deux masses surfaciques ($TH = \rho_e d / \rho_o d \times 100$).

Dans le cas d'un faisceau poly-énergétique, les équations précédentes doivent être intégrées sur l'ensemble du spectre incident.

1.2 Calculs numériques

Le calcul de la densité anhydre (ρ_o) pour chaque point du balayage a été réalisé au moyen d'un processus itératif qui parcourt entre 0,3 et 0,6 g cm⁻³ à pas de 0,001 g cm⁻³ en minimisant une erreur quadratique $f(\rho_o)$ définie par la fonction suivante :

$$\text{Min } f(\rho_o) = \int_{E_1}^{E_2} \left(\frac{I'(E)}{I_o(E)} - e^{-\rho_o d [\mu_o(E) + \mu_e(E) TH^f / 100]} \right)^2 dE$$

Où :

E_1, E_2 : limites de la plage d'énergie utilisée pour le calcul

TH^f : teneur en eau finale calculée par méthode gravimétrique

Avec ρ_o calculé pour chaque point du balayage, un nouveau processus itératif est chargé de calculer la teneur en eau du bois (TH^*) au cours des différents instants du processus de séchage. Le calcul de TH^* est réalisé en parcourant les humidités comprises entre 0 et 150% à pas de 0,1 %, et en minimisant l'erreur quadratique $g(TH)$ résultant de la fonction suivante :

$$\text{Min } g(TH) = \int_{E_1}^{E_2} \left(\frac{I(E)}{I_o(E)} - e^{-\rho_o d [\mu_o(E) + \mu_e(E) TH^* / 100]} \right)^2 dE$$

2. Démarche expérimentale

2.1 La cellule de séchage

Nous avons conduit le séchage artificiel de planches des fortes épaisseurs dans la cellule de séchage polyvalent du LERMaB. Cette cellule de séchage a été conçue pour une très large gamme de conditions expérimentales : elle peut atteindre jusqu'à 3 bars de pression ou un vide partiel de 150 mbar, avec une température de l'air jusqu'à 150°C.

La schéma de la cellule de séchage est présenté sur la figure 1. L'enceinte de séchage est un cylindre en acier inoxydable de 2 m de long et 90 cm de diamètre. Un flux d'air transversal est produit par 2 ventilateurs centrifuges réglés en vitesse par des variateurs de fréquence. Une partie du flux d'air passe par la partie supérieure du séchoir, où des résistances chauffantes permettent d'élever sa température à la température de consigne. L'autre partie du flux d'air passe par la partie inférieure et vient « lécher » une nappe d'eau régulée en température. Ici, l'air va se refroidir et se charger d'humidité. Ensuite, les deux flux se mélangent avant de passer au contact de la surface de la planche. Là le courant d'air apporte de la chaleur et capture l'humidité issue du séchage de l'échantillon.

Le schéma de la cellule de séchage est présenté sur la figure 1. De même que dans l'annexe 1 nous présentons des photographies descriptives de l'appareillage utilisé.

Le contrôle de la température de l'air et de l'eau est réalisé au moyen d'automates PID. L'asservissement permet de maintenir les températures de l'enceinte dans des plages très étroites : $\pm 1/10^\circ\text{C}$ pour le bac d'eau et $\pm 2/10^\circ\text{C}$ pour l'air.

Une balance électronique située en dehors de l'enceinte climatique permet de mesurer en continu la masse de l'avivé. Son montage et la capacité pour maintenir l'étanchéité de l'enceinte en sur-pression ou dépression a été décrit dans Bucki (2004).

2.2 Dispositif de rayons X

Pour préserver la polyvalence du séchoir et vu les conditions extrêmes de fonctionnement, nous avons conçu un dispositif de rayons X à l'extérieur de l'enceinte. Nous avons utilisé un tube émetteur en céramique model MCB65 de la marque *rtw*. Sa puissance maximale est de 40 W et supporte une tension jusqu'à 60 kV. L'anticathode en tungstène est refroidie par un flux d'eau que nous avons maintenu à 25°C en utilisant un cryothermostat. Dans l'annexe 1 nous présentons des photographies descriptives de l'appareillage utilisé.

Un générateur de la marque *Spellman* modèle XLG alimente le tube. Cet appareil régule la tension d'alimentation et le courant de retour avec très bonne précision. Sa puissance maximale est de 6 W (60 kV – 0,1 mA). Bien que la puissance nominale pour notre système soit très faible, nous avons choisi un refroidissement par flux d'eau afin que sa température soit contrôlée de façon simple et précise en utilisant un cryothermostat. En effet, la température de la source joue un rôle important pour la stabilité de l'émission au cours du temps.

La gaine de protection du tube a été entièrement conçue et fabriquée au LERMaB. Elle compte avec un système obturateur étanche aux rayons X qui est piloté par commande électrique (annexe 2). Un ensemble de sécurités connectées en série qui ferme l'obturateur en cas de fausse manœuvre tel que l'ouverture du séchoir par inadvertance. Par ailleurs, la gaine a été équipée d'un système d'alignement XY au moyen de deux vis de réglage qui permettent d'optimiser la position du spot d'émission. En plus, un capteur de débit connecté à l'« interlock » du générateur, assure que si le débit d'eau tombe au-dessous d'un seuil de 3 litres min⁻¹, le générateur s'éteint.

2.3 Détecteur et traitement de données

Nous avons utilisé un détecteur spectrométrique ponctuel à semi-conducteur du type cadmium tellure (CdTe) de la marque *Amptek*. Il est composé d'une diode CdTe de 9 mm² de surface et de 1 mm de profondeur. La zone sensible est refroidie par des éléments Peltier à 40°C au-dessous de la température de l'ambiance. La résolution énergétique du détecteur est autour de

0,5 keV. L'efficacité du capteur est proche de 100% pour une plage énergétique allant de 5 à 60 keV. Le signal est amplifié par l'amplificateur PX2T d'Amptek et traité par un analyseur multicanaux modèle MCA8000A du même fabricant.

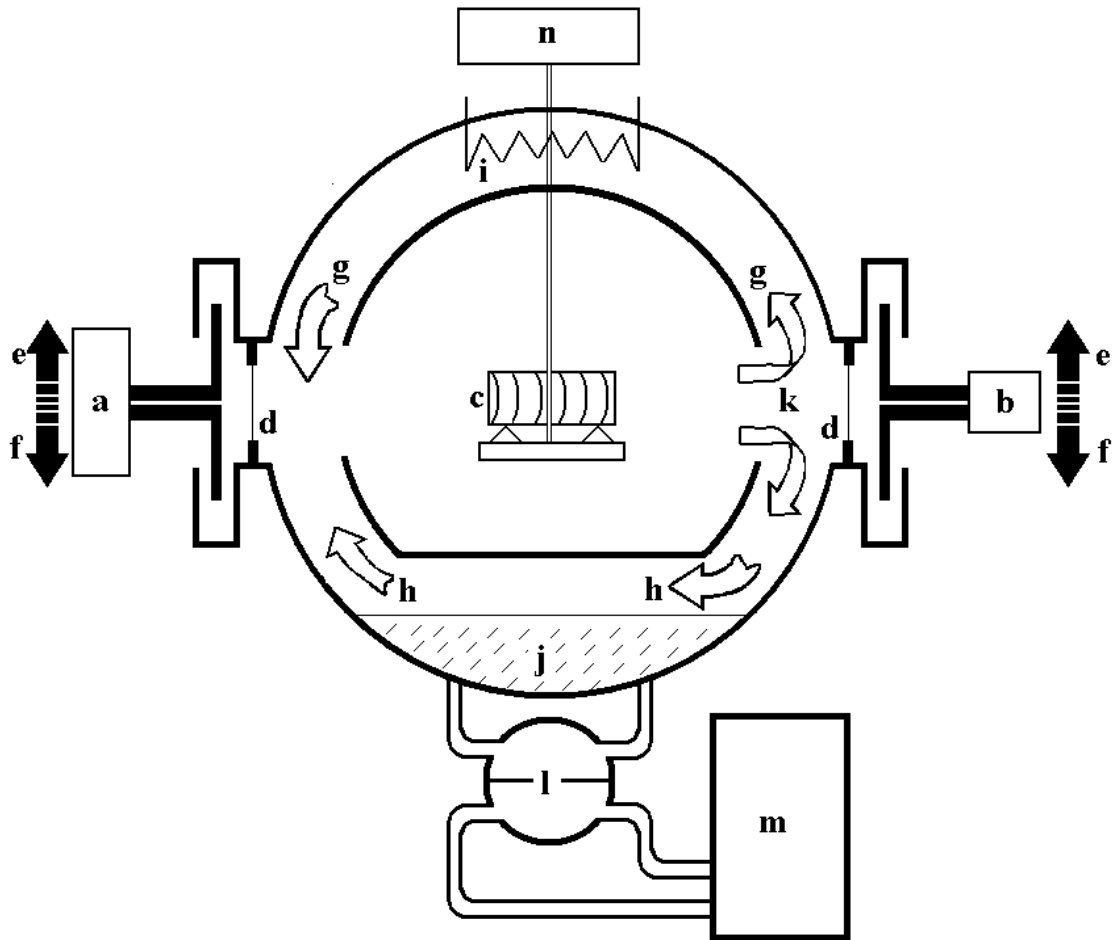


Figure 1. Système d'absorptiométrie de rayons X intégré dans la cellule de séchage polyvalente du LERMaB. (a) Source de rayons X, (b) détecteur, (c) échantillon, (d) feuilles en Teflon® (e) et (f) balayages, (g) flux d'air supérieur, (h) flux d'air inférieur (i) résistance électrique chauffante, (j) nappe d'eau, (k) placement des ventilateurs centrifuges, (l) échangeur de chaleur, (m) refroidisseur d'eau, (n) balance.

2.4 Fenêtres pour la traversée du faisceau X

Le séchoir compte plusieurs paires de hublots, placés en vis à vis et obturés par des brides en acier inoxydable et étanches en sur-pression et dépression. Sur deux de ces brides, une fente de

5 × 150 mm a été réalisé, pour permettre la traversée du faisceau. Des feuilles en téflon sont utilisées pour fermer ces ouvertures. Ce polymère présente l'avantage de peu atténuer le rayonnement, de supporter les températures élevées et d'être étanche à l'eau.

Au cours d'essais préliminaires, nous avons vu que la réalisation des ces deux « ouvertures » représentaient des « zones froides » où pouvait se condenser la vapeur d'eau de l'air interne. Cette condensation et l'écoulement d'eau lorsque les gouttelettes deviennent suffisamment grandes sont suffisantes pour perturber la mesure du rayonnement. Pour remédier à ce problème nous avons placé des bandes chauffantes autour de chaque hublot de façon à élever la température de cette zone au-dessus de la température de rosée.

2.5 Système de déplacement et de protection contre le rayonnement

A l'extérieur de l'enceinte du séchoir, le parcours du faisceau X se situe à l'intérieur d'un tube en laiton de 14 mm d'épaisseur de paroi. Le tube en laiton se termine par un bouclier mobile en aluminium revêtu d'une couche de 2 mm de plomb. Ce bouclier est enfermé dans une boîte protectrice avec le même revêtement plombé et fixé sur la cellule de séchage (Fig. 2). Cet ensemble constitue un véritable système de chicanes qui empêchent les fuites de rayonnement. Il faut noter que les protections sont identiques tant pour le côté émetteur que pour le côté récepteur.

Deux platines de mouvement permettent de déplacer la source et le récepteur en vis-à-vis de part et d'autre du séchoir. Ces platines sont entraînées par des moteurs pas à pas pouvant générer des déplacements avec une résolution de 1 µm (codage optique) sur un parcours de 15 cm. Ce système de marque *Newport-Microcontrôle*, nous a permis de commander par PC le déplacement de la source et du récepteur de façon synchronisée.

Les platines sont fixées sur un portique désolidarisé du séchoir, réalisé avec des profilés en aluminium de section 80×80 mm². Pour réduire la charge des platines, nous avons placé des contrepoids à l'aide d'un système de poulies. Des essais préliminaires ont montré que le portique pouvait vibrer avec une forte amplitude. Finalement, des contreventements et ancrages au sol l'ont rigidifié fortement.

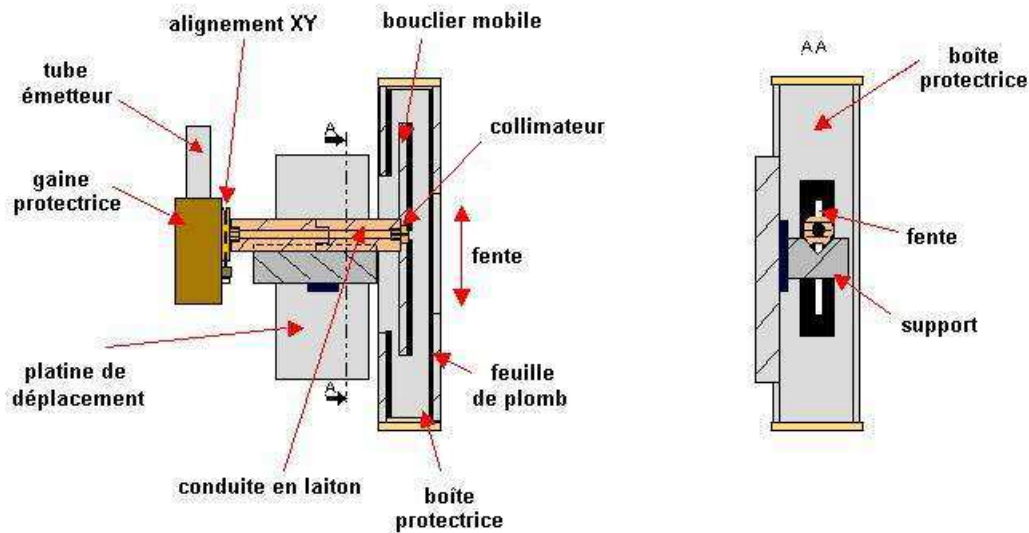


Figure 2. Système de déplacement et protection contre le rayonnement.

2.6 La collimation

Le cône d'émission de la source nue est de 28° , mais cet angle est fortement réduit lorsque le faisceau est guidé par la conduite en laiton. Néanmoins, pour limiter le spot à l'intérieur du séchoir au strict nécessaire, nous avons réduit le faisceau en utilisant un collimateur amovible avec un orifice de 2 mm de diamètre. Dans ces conditions, le spot d'émission présente une taille d'environ 1 cm de diamètre sur la fente du côté détecteur.

Du côté récepteur nous avons utilisé un collimateur en tungstène de 1 mm de diamètre. Ainsi seuls les rayons ayant traversé l'avivé horizontalement parviennent au récepteur. Le volume de mesure dans l'échantillon est donc approximativement un cylindre de 1 mm de diamètre multiplié par la largeur de l'échantillon.

2.7 Déroulement automatisé de l'acquisition

Un programme d'acquisition et de contrôle a été réalisé en Visual Basic pour gérer l'ensemble des appareillages de notre dispositif. Le protocole de mesure se déroule selon différentes étapes exposées ci-après :

2.7.1 Recherche de bords de l'échantillon

Un balayage à pas fin (0,2 mm) est effectué, au début de chaque cycle d'acquisition. Ce balayage s'avère nécessaire pour 2 raisons : (a) la position de l'échantillon peut varier au cours de l'essai car elle est supportée par un parallélogramme déformable lié à une balance ; (b) le retrait du bois fait varier l'épaisseur de l'échantillon. Donc, pour économiser du temps, ce balayage se réalise seulement au voisinage des surfaces de l'échantillon qui ont été repérées au cycle précédent (Fig. 3a). Un temps de comptage de 2 secondes, pour chacune des positions de ce balayage, s'est révélé suffisant. La position de la surface de la planche est assimilée au contraste maximal d'intensité entre 2 positions successives. Cette recherche permet de suivre l'évolution temporelle de l'épaisseur de l'échantillon au cours de son séchage, et en conséquence, de suivre les limites du domaine à balayer.

2.7.2 Mesure de l'intensité du rayonnement incident

Pour chaque cycle, nous avons effectué la mesure du rayonnement incident $I_0(E)$ en positionnant la source et le récepteur en dehors de l'échantillon (Fig. 3b). Ces mesures nous permettent aussi d'étudier la stabilité de l'émission au cours du temps et de calculer le coefficient de transmission à partir des valeurs mesurées à des instants proches. Le temps d'acquisition choisi a été assez long, de 150 secondes, de manière à obtenir un spectre incident suffisamment précis, notamment dans le comptage des photons plus énergétiques, qui sont relativement moins abondants et qui ont une importance considérable dans l'estimation de l'humidité puisqu'ils traversent l'échantillon plus facilement. Par ailleurs, ces deux mesures sont réalisées aux extrémités opposées de l'échantillon dans l'objectif de déceler des possibles problèmes d'alignement de la fente.

2.7.3 Balayage de l'épaisseur de l'échantillon

Les positions à balayer sont définies proportionnellement à l'épaisseur de l'échantillon (tableau III.1 et Fig. 3c). Nous effectuons un double balayage : d'abord ascendant et puis descendant. Pour une même position nous avons cumulé les deux balayages. Cette idée nous

permet de moyenner la perturbation g n r e par le changement de la teneur en eau au cours de la dur e du balayage et d'obtenir ainsi un temps moyen identique pour toutes les positions.

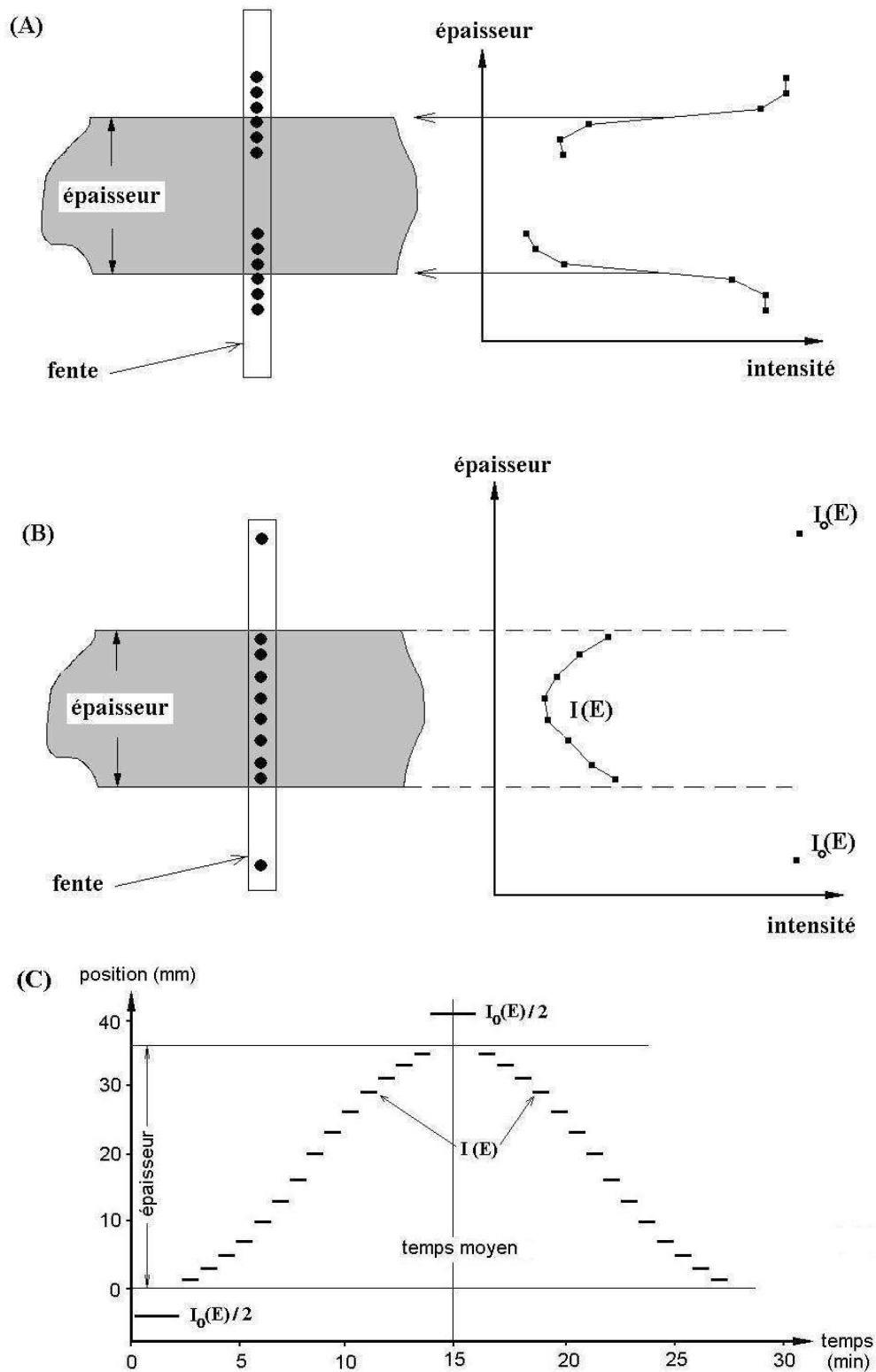


Figure 3. Sch ma du processus de balayage. (A) recherche de bords, (B) position des faisceaux $I_0(E)$ et $I(E)$, (C) exemple de la dur e d'acquisition pour l' chantillon de 35 mm.

Tableau III.1. Positions des points du balayage relativement à l'épaisseur de l'échantillon (en pourcentage d'épaisseur), et durée d'acquisition à chacune de ces positions (les positions symétriques sont sous-entendues).

Position	Echantillon de 35 mm	Echantillon de 65 mm	Durée (s)
0	En dehors de l'échantillon	En dehors de l'échantillon	150
1	5 %	3 %	40
2	10 %	5 %	40
3	15 %	8 %	40
4	20 %	12 %	40
5	27 %	16 %	40
6	35 %	20 %	40
7	45 %	25 %	40
8	-	30 %	40
9	-	35 %	40
10	-	45 %	40

2.8 Obtention de mesures destructives

A la fin du processus de séchage et une fois la teneur en eau d'équilibre atteinte, la partie centrale de l'avivé a été découpée en deux morceaux. L'un des deux morceaux a été découpé en 5 ou 9 tranches (dépendant de l'épaisseur de l'avivé) pour obtenir le profil de teneur en eau dans l'épaisseur de l'avivé, de façon destructive (Fig. 4). Tous les échantillons sont pesés puis placés dans un étuve à 103°C pendant près de 24 heures. Par interpolation numérique de la teneur en eau des tranches, nous avons calculé un profil de teneur en eau final (TH^f) avec la même résolution spatiale que le balayage du faisceau X.

Le second morceau a été replacé à l'état anhydre dans le faisceau de rayons X. Un nouveau processus d'enregistrement des coefficients de transmission est mené pendant quelques heures, pour calculer expérimentalement le coefficient d'atténuation du bois anhydre. D'autre part, l'obtention expérimentale du coefficient d'atténuation de l'eau a été réalisée avec une colonne d'eau déminéralisée de 30 mm de large dans la direction de passage du faisceau.

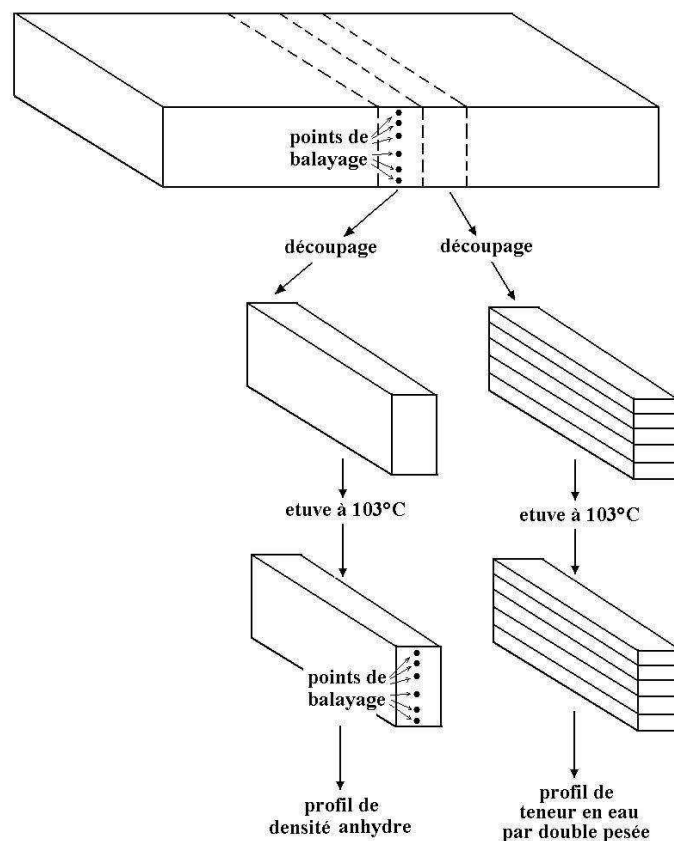


Figure 4. Schéma de découpe pour l'évaluation destructive de la teneur en eau et mesure de coefficient d'atténuation du bois anhydre.

2.9 Le matériel végétal et les conditions d'opération

2.9.1 Matériel végétal

Les échantillons étudiés ont été prélevés à 1,5 mètres de l'empatement, dans un épicéa (*Picea abies*) de 30 cm de diamètre, poussant dans une futaie proche de Nancy. La démarche expérimentale décrite a été réalisée pour 3 échantillons de la même essence, mais avec des caractéristiques différentes (Fig. 5) :

- Faible section ($35 \text{ mm} \times 55 \text{ mm} \times 600 \text{ mm}^3$) débitée sur quartier.
- Forte section ($65 \text{ mm} \times 85 \text{ mm} \times 600 \text{ mm}^3$) débitée sur quartier.
- Faible section ($35 \text{ mm} \times 71 \text{ mm} \times 600 \text{ mm}^3$) débitée sur dosse.

Pour approcher le comportement des transferts de masse dans des planches de longueur réelle, les extrémités des pièces ont été recouvertes d'une colle polyuréthane pour empêcher les transferts sur ces faces. De même, dans l'objectif d'obtenir un transfert de masse parfaitement unidimensionnel, nous avons pratiqué la même procédure sur les faces latérales.

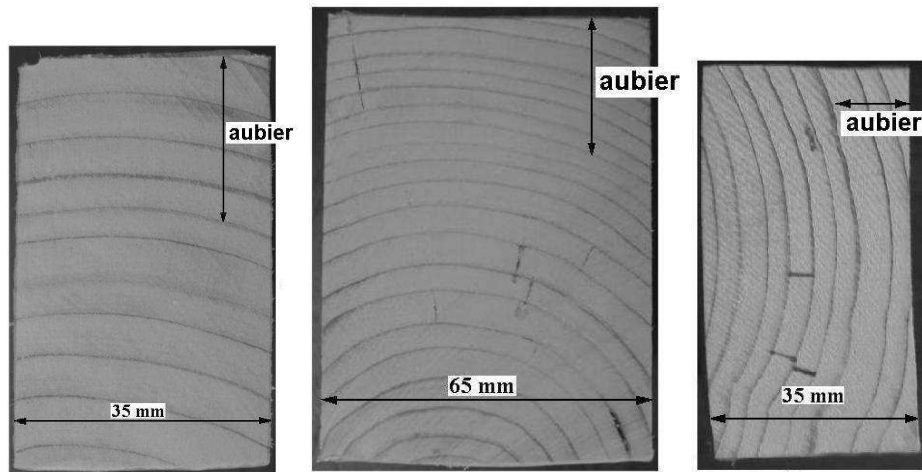


Figure 5. Photographies de la section transversale des trois planches séchées (Dans ces figures la direction du faisceau X est verticale).

2.9.2 Conditions d'opération

Le Tableau III.2 résume les conditions expérimentales. Il faut signaler que les essais ont été conduits pendant les mois de juin et juillet 2004, période durant laquelle la température de l'air à l'extérieur de la cellule (local) a oscillé entre 35° et 40°C.

Tableau III.2. Conditions opératoires.

	Paramètre	Magnitude
Source de rayons X	Tension	40 kV
	Intensité	0,010 mA
Traitements de signal	Amplification (gain) du PX2T	1,0
	Discrimination par «RiseTime»	éteinte
	Résolution du MCA8000A	256 canaux
Conditions du séchage	Température de l'air	70°C
	Température de l'eau du bac	50°C
	Humidité relative	80%
	Vitesse de l'air	~ 1,5 m s ⁻¹

2.10 Choix de l'intensité et de la dureté du rayonnement

Pour une durée d'acquisition donnée, plus le nombre de photons arrivant au détecteur est important, plus la mesure est précise. Nous avons effectué le choix de l'intensité du rayonnement en cherchant à obtenir un taux de comptage le plus élevé possible. Cependant, nous n'avons pas excédé une certaine limite car l'obtention d'un taux de comptage trop élevé fait perdre la linéarité du système d'acquisition par l'empilement (« *pile-up* »).

La précision de l'estimation de la teneur en eau est très sensible à la dureté du rayonnement. Pour des humidités et/ou des largeurs de passage élevées, un rayonnement trop mou fera parvenir au récepteur trop peu de photons et la détermination du coefficient de transmission deviendra imprécise. A l'inverse, pour des humidités et/ou largeurs de passage faibles, un rayonnement très dur traversera trop facilement l'échantillon pour permettre une mesure précise du coefficient de transmission.

Le régime permanent de l'émission de la source étant atteint après plusieurs heures à partir de l'entrée de la consigne, nous avons choisi de maintenir les mêmes valeurs de tension et d'intensité pendant tout l'essai.

3. Résultats

3.1 Durée du séchage

Le séchage de l'échantillon de 35 mm d'épaisseur débité sur quartier a pris 4 jours et demi. Nous avons réalisé un cycle de balayage complet toutes les 30 minutes, soit un total de 226 cycles.

Pour l'échantillon de 65 mm d'épaisseur, la durée du séchage a été de 7 jours. Nous avons réalisé un balayage complet toutes les 45 minutes soit un total de 215 cycles de mesure.

Comme nous pouvions l'escompter, l'échantillon débité sur dosse sèche plus vite que les deux autres : en 2,75 jours. Nous avons réalisé 129 cycles de balayage toutes les demi-heure.

3.2 Calcul expérimental des coefficients d'atténuation

Dans la figure 6 nous présentons la courbe du coefficient d'atténuation pour le bois anhydre et pour l'eau obtenue de façon expérimentale comparée avec celles du NIST (Fig. 18 du chapitre II). Nous avons une bonne concordance des courbes entre 15 et 35 keV. En dehors de cette plage, les courbes s'éloignent.

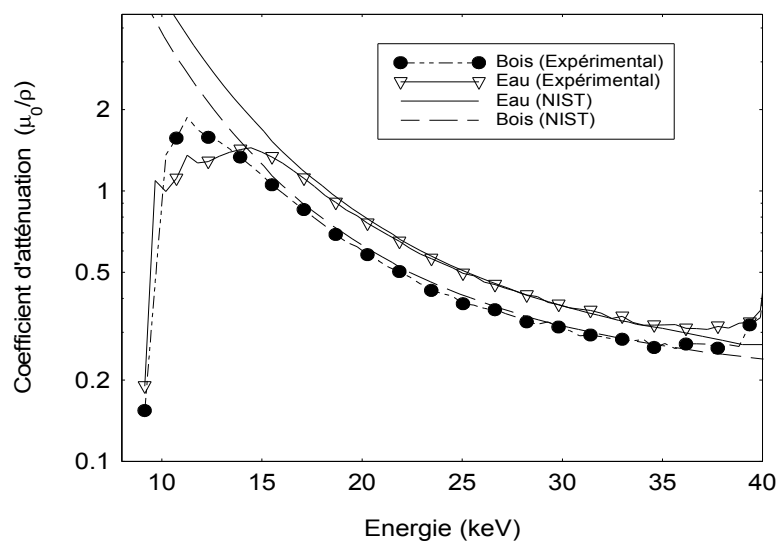


Figure 6. Coefficients d'atténuation de l'eau et du bois mesurés expérimentalement, par comparaison avec ceux du NIST. (Echelle logarithmique en ordonnée)

3.3 Stabilité de l'émission

Pour étudier la variabilité du rayonnement incident (I_0) tout au long de l'essai de séchage, nous avons calculé la somme des photons dans la plage de 13 à 40 keV pour chacun des cycles du balayage (Fig. 7). Nous pouvons voir que les courbes sont relativement plates, néanmoins un bruit s'ajoute au signal, avec une variance très importante (surtout dans l'essai de séchage pour l'échantillon débité sur dosse).

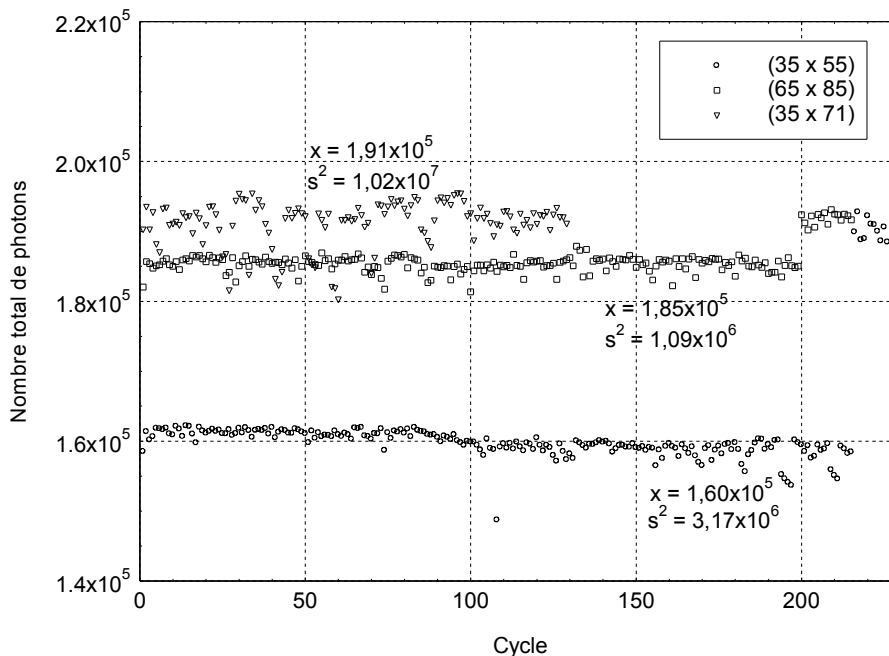


Figure 7. Nombre total de photons incidents mesurés pour les 215 cycles de mesure (somme des canaux 22 à 75).

Ce résultat montre l'intérêt d'avoir utilisé le spectre incident du même cycle pour le calcul des coefficients de transmission.

La figure 8 présente le spectre incident moyenné sur l'ensemble des cycles du balayage. Nous avons superposé la variance par canal. Nous pouvons observer que la variance ne suit pas la moyenne. Dans la zone du spectre de faible énergie la variance par canal est très forte, mais elle s'affaiblit dans la zone plus énergétique.

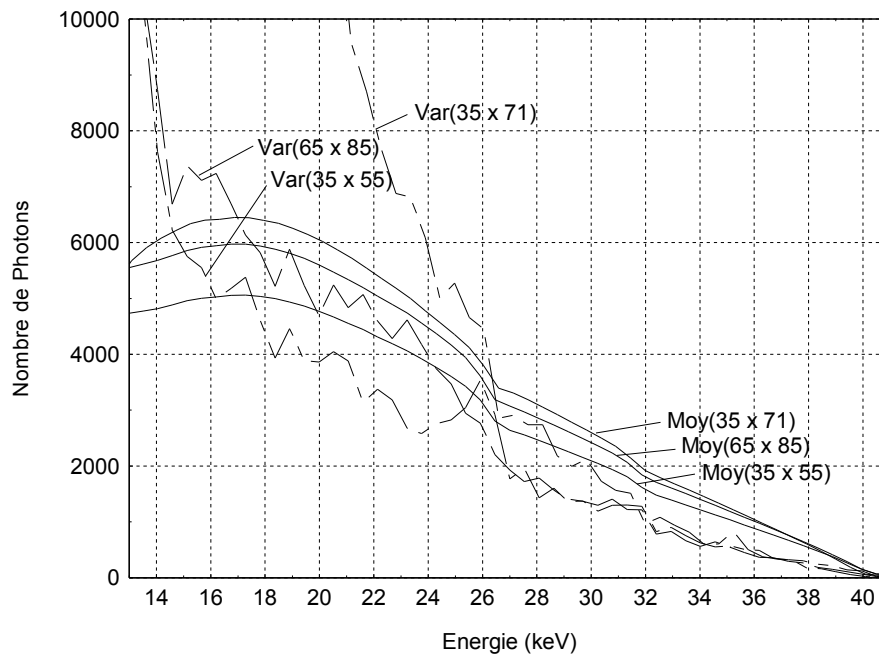


Figure 8. Spectre incident moyen et variance par canal pour l'ensemble des cycles de mesure dans les 3 essais. (Temps de comptage de 300 secondes).

3.4 Evolution des fonctions $f(\rho_o)$ et $g(TH)$, obtention des minimums.

La figure 9 présente l'évaluation de la fonction $f(\rho_o)$ pour la plage de densité anhydre comprise entre 300 et 350 kg m⁻³ (échantillon de section transversale 35 mm × 55 mm). Pour le calcul de $f(\rho_o)$, les limites E_1, E_2 de la plage d'énergie utilisée ont été fixées entre 16 et 40 keV. Dans le graphique chaque courbe représente une position dans le bois. Du fait que les courbes ne sont pas bruitées les valeurs optimales (minima) sont bien visibles.

De manière similaire à la figure 9, la figure 10 présente un exemple d'évaluation de la fonction $g(TH)$ pour chaque position du balayage de l'échantillon à un instant donné du processus de séchage, (dans l'exemple nous avons utilisé le cycle numéro 25 sur 226).

La densité anhydre de l'échantillon varie entre 315 et 333 kg m⁻³ pour les différentes positions de l'échantillon (Fig. 11)

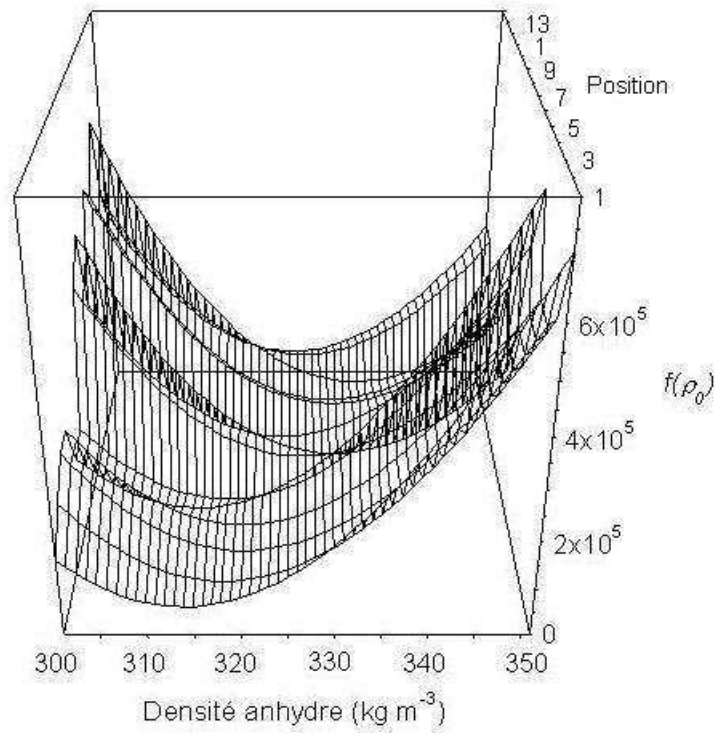


Figure 9. Evaluation de la fonction $f(\rho_o)$ pour le cycle numéro 25 dans une plage de densité anhydre comprise entre 300 et 350 kg m⁻³.

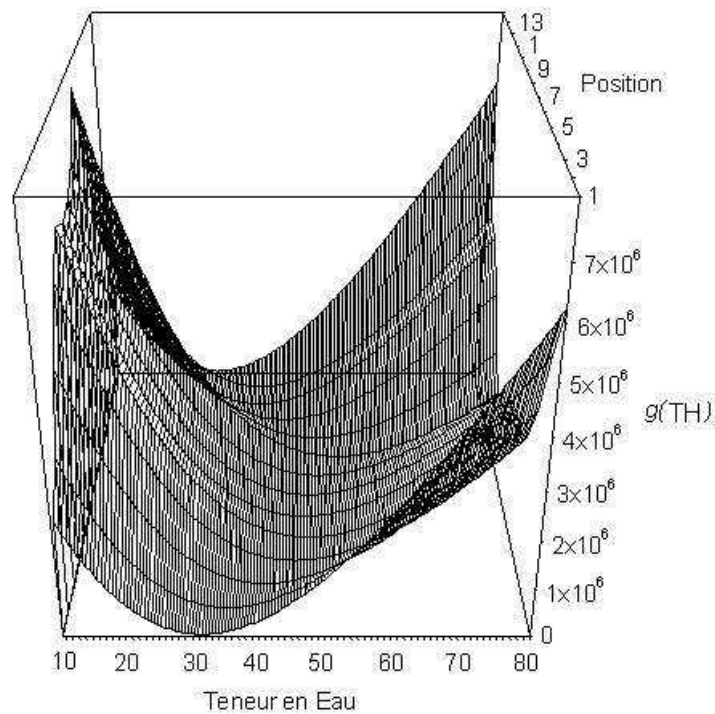


Figure 10. Evaluation de $g(TH)$ pour le cycle numéro 25 dans une plage de teneur en eau comprise entre 10 et 80%.

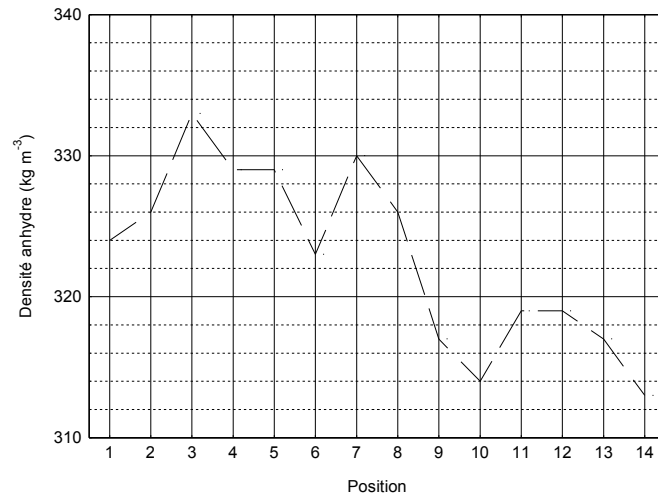


Figure 11. Valeur optimale pour la densité anhydre (ρ_o) pour chaque position de l'échantillon (cycle 226).

3.5 Profils de transmission et profils d'humidité au cours du temps

La figure 12 présente l'évolution du spectre transmis $I(E)$ pour les positions 1 et 7 au cours du séchage. Nous pouvons voir qu'au fur et à mesure que l'échantillon réduit sa teneur en eau, la quantité de photons transmis augmente. Par ailleurs la moyenne énergétique du spectre se déplace vers les canaux moins énergétiques.

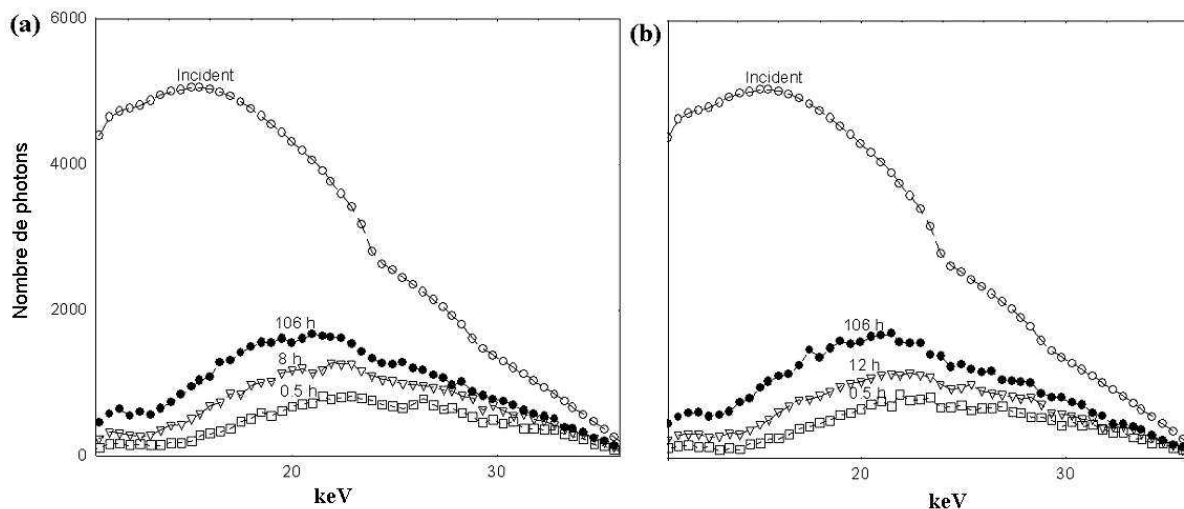


Figure 12. Evolution du spectre du rayonnement au cours du séchage.

(a) bord de la planche (b) cœur de la planche.

La figure 13A présente l'évolution de la teneur en eau du même échantillon au cours du séchage. Nous pouvons observer que le profil de TH au début du séchage est relativement plat, ensuite il prend une forme parabolique qui revient plate à la fin du séchage. Ce phénomène met en évidence le fait que la teneur en eau se réduit plus rapidement à la périphérie qu'au centre de l'échantillon.

Le résultat de l'évolution de la teneur en eau pour l'échantillon à forte section est présenté dans la figure 13B. Ici, la forme parabolique du profil de TH est plus accentuée, et le séchage est plus lent, ce qui révèle une plus grande difficulté de séchage de l'échantillon.

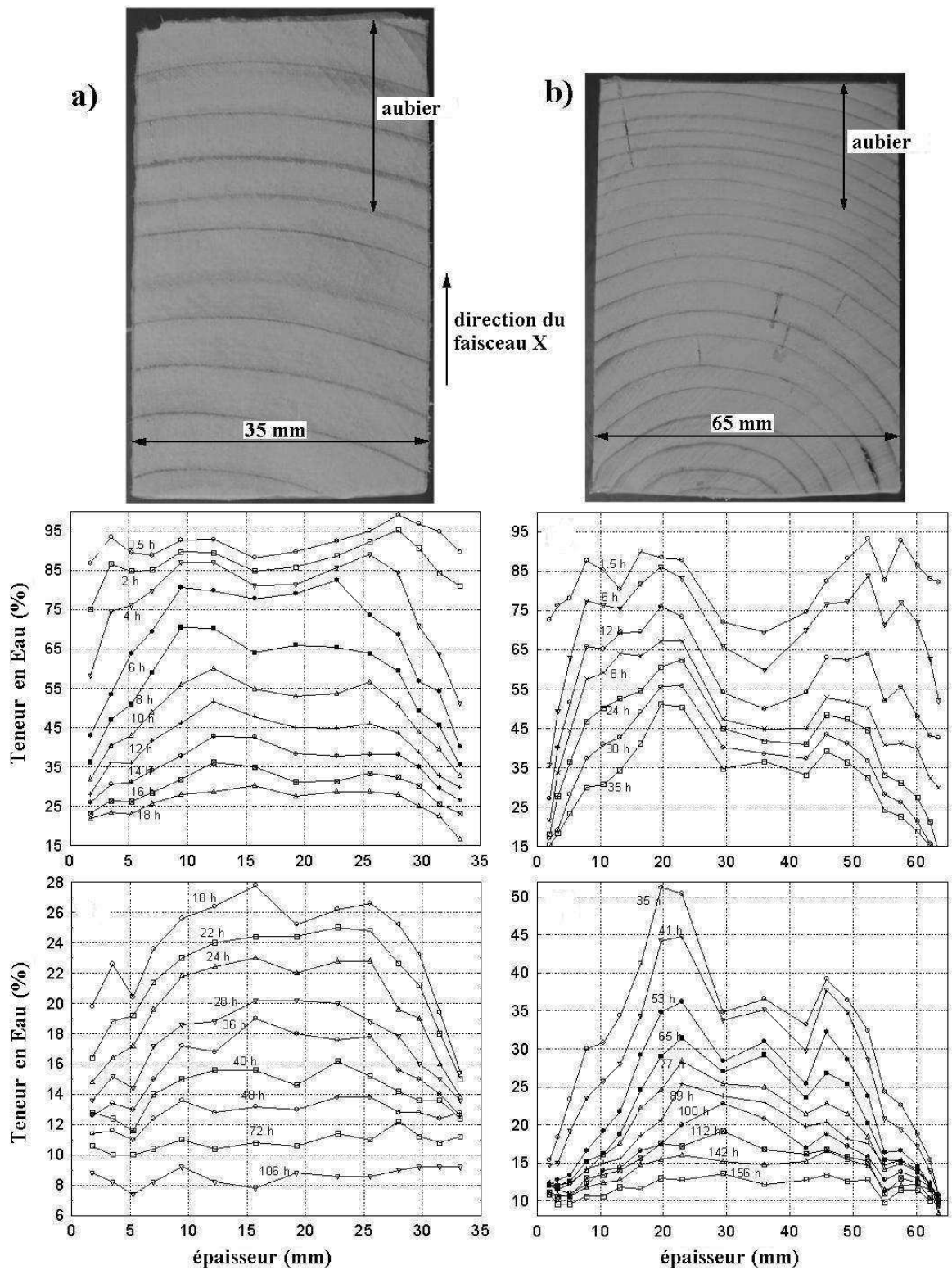


Figure 13. Evolution de la teneur en eau au cours du séchage de l'échantillon débité sur quartier d'épaisseur 35 mm d'épaisseur (150 premiers cycles).

Pour sa part, l'échantillon débité sur dosse a présenté initialement deux zones avec des teneurs en eau très différentes, car il comporte une zone d'aubier et une zone de duramen. Dans la figure 14 nous observons que chaque moitié du profil de *TH* présente une évolution pratiquement indépendante l'une par rapport à l'autre. Ce résultat inattendu est une observation intéressante pour la compréhension du séchage du bois : les deux zones semblent parfaitement cloisonnées.

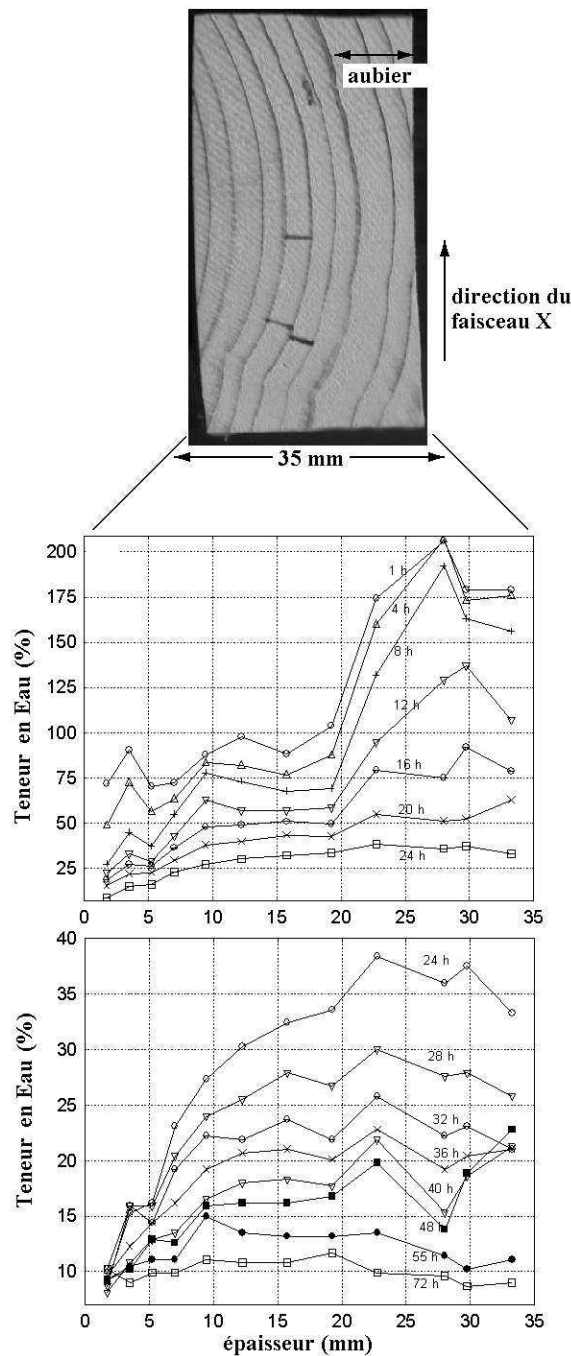


Figure 14. Evolution de la teneur en eau au cours du séchage de l'échantillon débité sur dosse et 35 mm d'épaisseur.

4. Discussion des résultats

4.1 Sources statistiques d'imprécision

La variabilité statistique inhérente à la production des rayons X et l'incertitude sur la précision des courbes d'atténuation $\mu_o(E)$ et $\mu_e(E)$ semblent jouer un rôle important sur la précision de la mesure de la teneur en eau du bois. Pour quantifier cet effet, nous avons développé une méthode stochastique qui permet d'évaluer l'écart type dans l'estimation de la teneur en eau. La méthode consiste de réaliser des tirages de nombres aléatoires et à calculer de la variance des résultats de la teneur en eau. Les détails de la méthode seront présentés au chapitre suivant.

En appliquant la méthode à nos conditions de mesure, nous avons obtenu le résultat présenté sur la figure 15 :

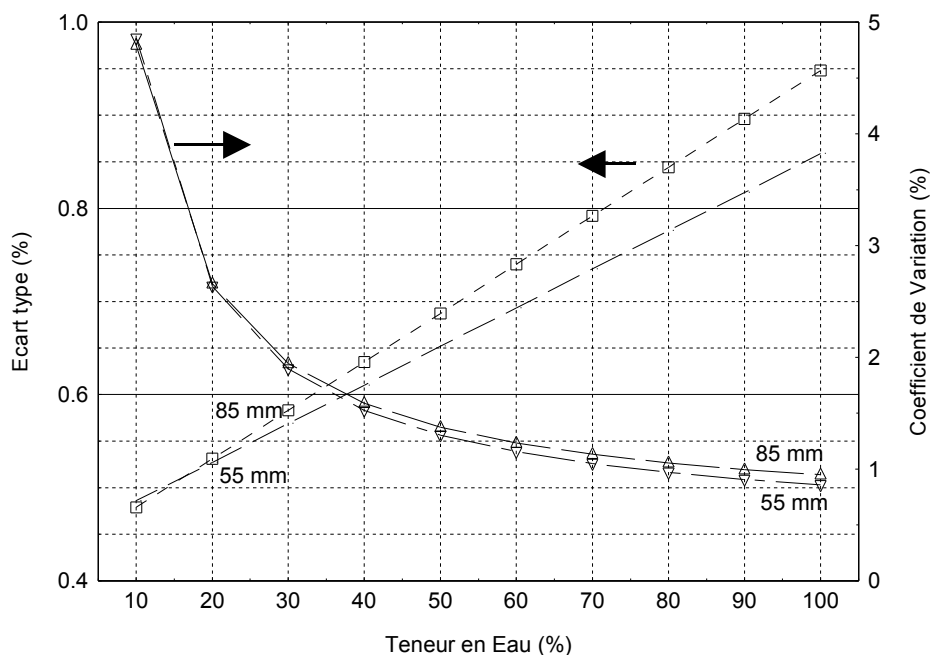


Figure 15. Ecart type et coefficient de variation de l'estimation de la teneur en eau en fonction de la teneur en eau pour deux épaisseurs différentes.

La courbe présentée démontre que l'écart type augmente avec la teneur en eau du bois et ceci est dû à la plus faible quantité de photons reçus lorsque l'échantillon est humide. Néanmoins,

si nous exprimons l'incertitude de mesure comme le coefficient de variation (σ / \bar{x}), alors, elle sera plus faible à des teneurs en eau plus élevées.

La précision de la mesure peut être améliorée en augmentant le nombre de photons cumulés. Le comptage de photons peut être augmenté grâce à la durée d'acquisition, au flux de photons ou à la dureté du faisceau incident. Cependant, ces trois possibilités sont contraintes par les spécifications de l'équipement et les conditions expérimentales de mesure.

Par exemple, la durée d'acquisition des spectres ne peut pas être trop longue car le balayage complet de l'épaisseur ne doit pas excéder la durée pour laquelle la teneur en eau est considérée comme inchangée. La deuxième possibilité consistant à augmenter l'intensité du faisceau n'est pas envisageable car le taux de comptage est limité par l'électronique. Finalement, si la dureté du faisceau est trop élevée, l'atténuation sera trop faible pour permettre de tirer des informations utiles. En effet, nous verrons au prochain chapitre que pour une masse surfacique donnée, il existe une plage énergétique qui optimise les résultats.

4.2 Sources non statistiques d'imprécision

4.2.1 Perturbation thermique

Le séchoir élève la température du local où il est placé. Aussi, la fluctuation de la température de la pièce entre le jour et la nuit, avec les déperditions thermiques, perturbe-t-elle le comptage des photons au niveau du récepteur au moyen de différents processus :

- a) **La dilatation des collimateurs** : la dilatation thermique des collimateurs peut changer le diamètre de leurs orifices et modifier le nombre de photons arrivant jusqu'au récepteur.
- b) **La déformation du portique** : la dilatation des profilés peut conduire le portique à « vriller » légèrement. La déformation engendrée amènerait le récepteur à recevoir une partie différente du cône d'émission, sur laquelle le nombre de coups n'est pas réparti de façon homogène.

- c) **Le capteur insuffisamment refroidi** : les éléments Peltier réduisent la température de la diode de 40-45°C. Cependant, le capteur étant placé dans une ambiance à 35-40°C le refroidissement insuffisant peut dégrader le rapport signal/bruit des mesures. Cet effet a pu être augmenté par l'ajout des bandes chauffantes qui empêchent la condensation d'eau sur les fentes recouvertes de feuilles de téflon.

4.2.2 Perturbation due au retrait du bois

Le retrait perturbe la mesure d'atténuation du rayonnement X pour trois raisons majeures :

- a) **Retrait «différentiel » suivant l'épaisseur** : la surface séchant avant le cœur, le retrait va être hétérogène dans l'épaisseur de l'échantillon. Par conséquent, les balayages ne sont pas effectués exactement aux mêmes positions matérielles de l'échantillon au cours d'essai. Or, la densité du bois peut-être très hétérogène suivant cette direction, surtout dans l'avivé débité sur dosse.
- b) **Modification de la densité de matière ligneuse** : Le retrait modifie la densité de matière ligneuse par le rapprochement des parois cellulaires, lorsque la teneur en eau est au-dessous du PSF. Pour une masse anhydre qui ne change pas, le volume de l'échantillon se réduit graduellement au-dessous du PSF, et par conséquent, la densité ligneuse augmente.

5. Conclusion et Perspectives

Nous avons présenté un nouveau dispositif expérimental et une méthode pour déterminer de façon non destructive et sans contact la cartographie de la teneur en eau du bois. Le système présenté est capable de quantifier les gradients d'humidité dans l'épaisseur d'une planche durant le processus de séchage. Le dispositif a été intégré à une cellule de séchage polyvalente qui est capable d'appliquer une large gamme de conditions.

L'incertitude théorique de mesure est inférieure à 1% de teneur en eau pour des teneurs en eau inférieures à 100%. En valeurs relatives cette incertitude est toujours inférieure à 5% pour le bois sec et peut atteindre moins de 1% pour le bois humide.

Cette incertitude a été calculée en utilisant un modèle stochastique créé spécialement pour ce type d'application. Néanmoins, l'incertitude réelle a dû être plus importante en considérant les perturbations thermiques de l'appareillage et les perturbations ajoutées par le retrait du bois.

Dans un travail futur, pour réduire l'imprécision il faudra :

- Réduire les oscillations en température de tous les dispositifs mécaniques et électroniques au cours des essais.
- Corriger les coefficients de transmission compte tenu du retrait horizontal de l'échantillon.
- Balayer des positions fixes dans l'échantillon pour réaliser le retrait différentiel dans l'épaisseur du bois ; celui-ci est envisageable à l'aide des micro-dispositifs électromécaniques enfoncés dans le bois.

L'ensemble cellule de séchage et dispositif de rayons X pourra servir dans le court terme pour :

- Identifier la perméabilité relative gazeuse et liquide dans le bois, en utilisant les profils d'humidité couplés au modèle TransPore (Perré et Turner, 1996 ; Rémond, 2004).
- Clarifier l'incertitude sur la formation d'une « couche sèche » au début du séchage, laquelle contribuerait à rendre plus difficile le séchage (Rémond *et al.* 2005).

ANNEXE 1

Photographies du montage

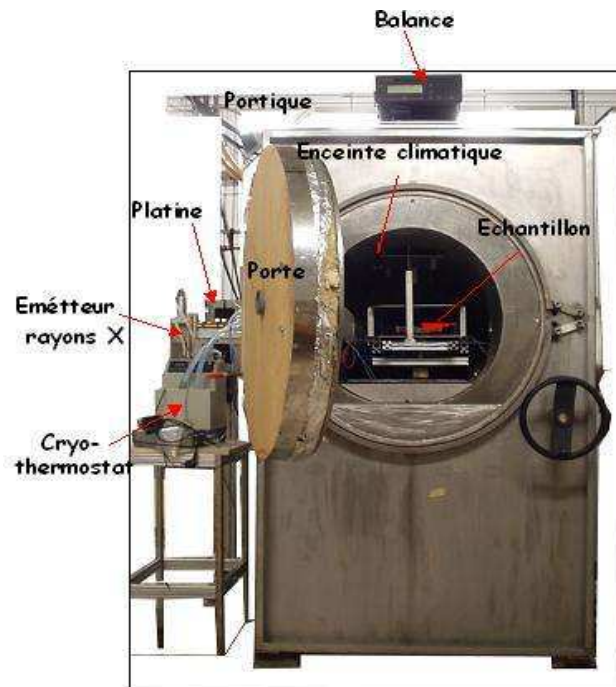


Figure16. Face avant de la cellule de séchage.

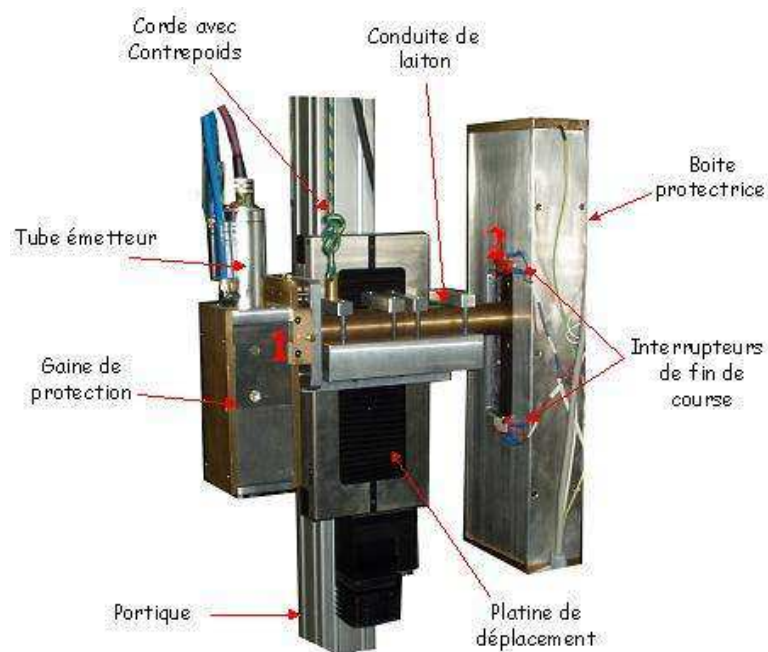


Figure17. Détails du système de déplacement dans le côté l'émetteur.

ANNEXE 2

Détails de la source de rayons X



Figure 18. Gaine de protection avec le dispositif d'alignement XY.

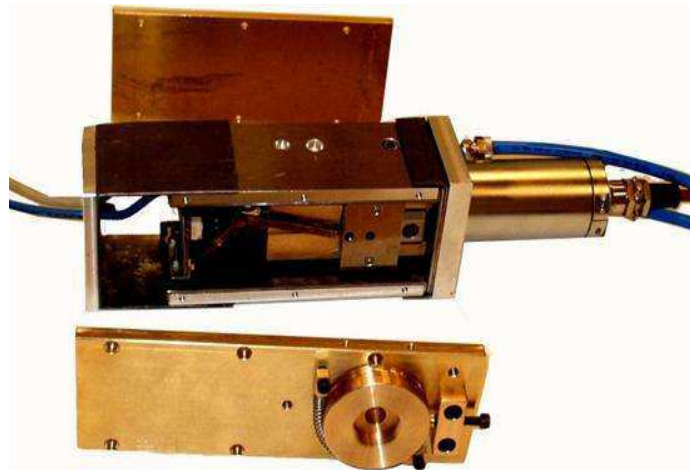


Figure 19. Vue de l'intérieure de la gaine.

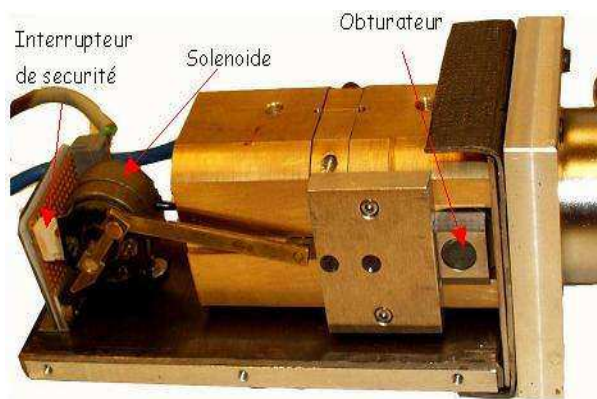


Figure 20. Détail du système d'obturation à commande électrique.

Chapitre IV

Détermination simultanée de la teneur en eau et de la densité du bois par atténuation d'un rayonnement X poly-énergétique

Introduction

L'idée de déterminer la teneur en eau du bois et la densité du bois de façon simultanée par atténuation des radiations ionisantes n'est pas récente. Déjà au début des années 80, Olson *et al.* (1982) ont présenté une étude théorique de faisabilité au moyen de la méthode bi-énergétique DEXA pour la mesure de la teneur en eau de feuilles de placage et de bois massif. Cependant, ils ont complètement rejeté cette possibilité car leur estimation de la précision de la teneur en eau calculée atteignait en moyenne 50% de la valeur mesurée. Ils attribuent l'infaisabilité de la méthode à la trop petite différence des coefficients d'atténuation massiques de l'eau et du bois.

Malgré cet antécédent, dans ce chapitre nous proposons la détermination théorique et expérimentale de la teneur en eau au moyen d'un rayonnement avec un spectre poly-énergétique, issu directement d'un tube de rayons X. Nous développons un algorithme d'optimisation capable de trouver les valeurs de $\rho_o d$ et de $\rho_e d$ qui minimisent l'écart entre le coefficient de transmission expérimental et le théorique. Le rapport entre ces valeurs optimales correspond à la teneur en eau estimée du bois.

Sachant que la proximité des coefficients d'atténuation du bois et de l'eau rend très difficile l'enjeu, dans la première partie de ce chapitre, nous évaluons la faisabilité de la détermination simultanée de la teneur en eau du bois. Nous cherchons les conditions optimales de mesure en utilisant l'algorithme de simulation stochastique développé particulièrement à cet effet.

La deuxième partie du chapitre sera consacrée à l'application expérimentale de la méthode de détermination simultanée de la teneur en eau et densité du bois. Finalement, nous réalisons une analyse de nos résultats en obtenant des conclusions et des perspectives de la méthode présentée.

1. Méthode de détermination simultanée des phases

1.1 Equations fondamentales

Au deuxième chapitre, nous avons vu que la différence dans les coefficients d'atténuation entre plusieurs phases mélangées constitue la base des méthodes pour l'identification des proportions de phases. Nous avons présenté la méthode DEXA, qui consiste en un système d'équations où les paramètres connus sont les coefficients d'atténuation massiques et les inconnues sont les masses surfaciques de chacune des phases. Au troisième chapitre, nous avons utilisé une méthode itérative pour trouver la teneur en eau (TH) qui minimise une fonction d'erreur quadratique $g(TH)$ mais utilisant une valeur de $\rho_o d$ calculée d'avance. De façon à peu près semblable, nous cherchons ici à minimiser une fonction g dépendant des deux paramètres inconnus $\rho_o d$ et $\rho_e d$, selon :

$$\text{Min } g(\rho_o d, \rho_e d) = \int_{E_1}^{E_2} \left(\frac{I(E)}{I_o(E)} - e^{-\rho_o d \mu_o(E) - \rho_e d \mu_e(E)} \right)^2 dE \quad (\text{IV.1})$$

où :

$\frac{I(E)}{I_o(E)}$: coefficient de transmission mesuré expérimentalement,

$\mu_o(E)$: coefficient d'atténuation massique du bois ($cm^2 g^{-1}$),

$\mu_e(E)$: coefficient d'atténuation massique de l'eau ($cm^2 g^{-1}$).

Ici la teneur en eau correspond au rapport entre les masses surfaciques, selon :

$$\rho_e d / \rho_o d \times 100.$$

Graphiquement, la méthode cherche le mélange optimal entre les courbes théoriques $\mu_o(E)$ et $\mu_e(E)$ pour s'approcher de la courbe expérimentale $\ln\{I_o(E)/I(E)\}$ (Fig. 1).

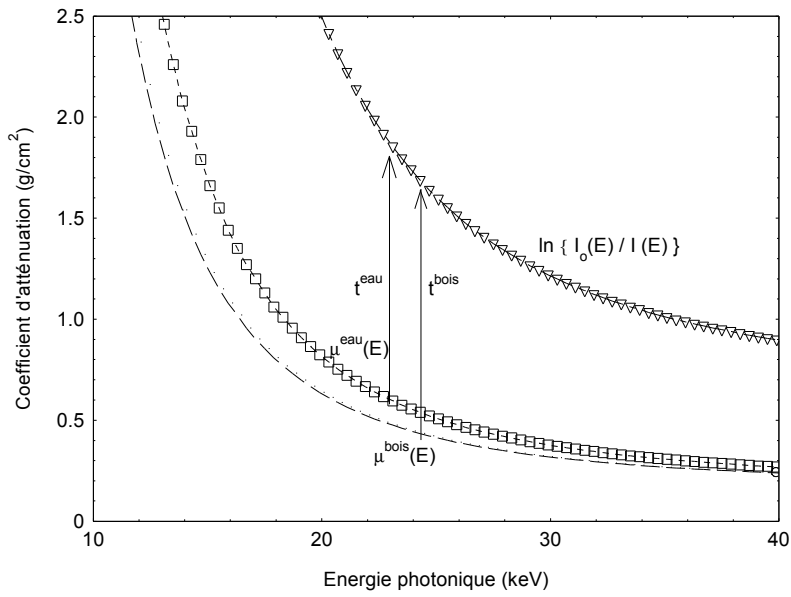


Figure 1. Explication graphique de la méthode.

1.2 Calculs numériques

Pour réaliser la minimisation de la fonction $g(\rho_o d, \rho_e d)$, nous pouvons utiliser une méthode inverse (Fig. 2) qui nous permet d'identifier des paramètres inconnus (masses surfaciques) par comparaison aux résultats expérimentaux (coefficient de transmission).

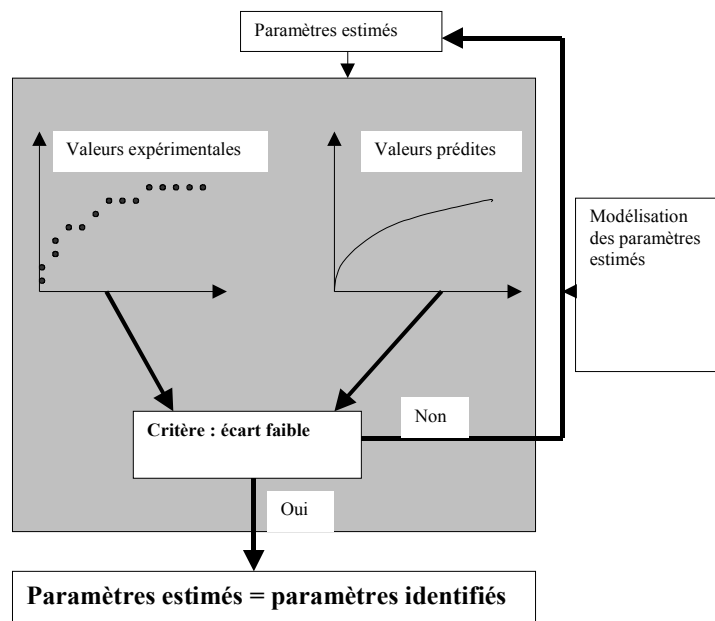


Figure 2. Schéma du processus d'identification numérique d'un paramètre physique par méthode inverse (Kouchadé, 2004)

Le livre « *Numerical Recipes* » (Press *et al.* 1992) décrit plusieurs méthodes pouvant être utilisées dans notre cas pour minimiser la fonction $g(\rho_o d, \rho_e d)$. Parmi celles-ci, nous utilisons la méthode du simplexe ou « *downhill-simplex* » car elle est bien adaptée à notre problème. En effet, pour l'algorithme du simplexe, contrairement aux autres algorithmes, aucune dérivation de fonction n'est nécessaire, ce qui est beaucoup moins contraignant quant à la régularité de cette dernière (Kouchadé, 2004).

L'algorithme simplexe est codifié dans la fonction « *Amoeba* » utilisant Fortran 77 (page 404 de Press *et al.* 1992). Dans la pratique, nous avons re-codifié cette fonction en utilisant le langage C, et nous avons implémenté la fonction d'optimisation « *func* » selon notre équation IV.1.

Nous ne décrivons ici pas les détails de l'algorithme du simplexe. Des détails de son fonctionnement peuvent être trouvés dans Kouchadé (2004) qui a utilisé l'algorithme pour identifier des paramètres de la migration d'eau dans un milieu poreux. Mais nous pouvons retenir que pour notre application, *Amoeba* réalise une recherche des valeurs optimales de $\rho_o d$ et de $\rho_e d$ par approximations successives. L'algorithme s'arrête lorsque la valeur de *func* entre deux itérations successives change moins qu'un seuil de tolérance (*ftol*) prédéterminé, (*ftol* est égal à 10^{-6} dans notre application).

REMARQUE : La méthode décrite suppose que les valeurs mesurées $I_o(E)$ et $I(E)$ pour chaque canal correspondent à la quantité de photons réels sans décalages énergétiques (capteur avec résolution idéale et sans artefacts).

2. Détermination des conditions optimales de mesure

2.1 Description de la méthode stochastique

Nous avons vu que la variabilité statistique inhérente à la production des rayons X et l'incertitude sur la précision des courbes d'atténuation $\mu_o(E)$ et $\mu_e(E)$ jouent fortement dans la précision de la mesure de la teneur en eau du bois. Dans le but d'évaluer les conditions optimales de mesure de la teneur en eau par atténuation des rayons X, nous avons développé une méthode stochastique. La méthode décrite aux paragraphes suivants prend en compte la nature aléatoire du rayonnement X, qui est régi par la distribution de Poisson et une variabilité dans la courbe des coefficients d'atténuation que nous avons bruité avec une distribution gaussienne.

2.1.1 Variabilité de l'émission

A partir du spectre incident moyen $I_o(E)$, nous avons créé un spectre incident bruité par tirage des nombres aléatoires distribués selon une fonction gaussienne⁴ avec moyenne et variance égale à $I_o(E)$. La distribution gaussienne est obtenue au moyen de deux nombres aléatoires uniformément distribués entre 0 et 1 selon la méthode décrite en Press *et al.* (1992).

Simultanément, à partir du spectre incident moyen, nous avons calculé un spectre transmis théorique $I(E)$ qui est bruité avec une variance égale à $I(E)$ de la même façon (Fig. 3).

⁴ L'utilisation d'une distribution gaussien est plus simple qu'une distribution Poisson et se justifie pleinement par la loi des grands nombres.

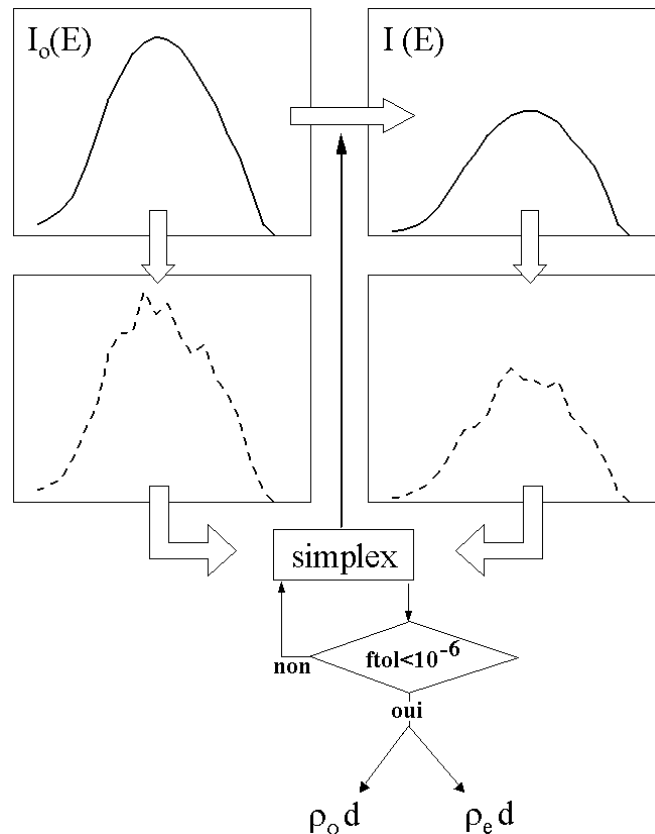


Figure 3. Schéma du processus de bruitage des spectres et identification de masses surfaciques.

Au moyen d'un processus itératif du type Monte-Carlo, nous avons créé des centaines de spectres $I_o(E)$ et $I(E)$ bruités par tirage de nombres aléatoires. Pour chaque itération nous avons calculé les valeurs des masses surfaciques du bois ($\rho_o d$) et d'eau ($\rho_e d$) en utilisant la méthode d'identification par optimisation simplex (équation IV.1). Finalement, pour l'ensemble d'itérations nous avons calculé l'écart type des deux paramètres.

2.1.2 Variabilité des coefficients d'atténuation

Les différences de composition chimique structurale du bois et extractibles peuvent influencer les coefficients d'atténuation. Pour prendre en compte cette variabilité, nous avons bruité la courbe d'atténuation $\mu_o(E)$ au moyen d'un tirage de nombres aléatoires distribués selon une fonction gaussienne avec un écart type proportionnel à la valeur théorique de $\mu(E)$. Nous avons effectué une procédure similaire pour $\mu_e(E)$. Pour chaque itération nous avons

sauvegardé les valeurs calculées pour les masses surfaciques du bois ($\rho_o d$) et d'eau ($\rho_e d$). Comme auparavant, nous avons calculé l'écart type de ces estimations.

2.1.3 Validation de la méthode

La validation de notre méthode a été réalisée par correspondance avec une méthode analytique utilisée dans le contexte de la méthode bi-énergétique DEXA. En effet, les équations de la variance de la masse surfacique ($VAR(\rho d)$) par méthode DEXA ont été présentées par (Sчена *et al.*, 2002 ; Létang *et al.*, 2003). Ces équations sont présentées ci-après :

$$VAR(\rho_e d)|_{VAR(\mu)=0} = \frac{1}{\Delta^2} \left\{ (\mu_1^{bois})^2 VAR(\ln T_2) + (\mu_2^{bois})^2 VAR(\ln T_1) \right\}$$

$$VAR(\rho_o d)|_{VAR(\mu)=0} = \frac{1}{\Delta^2} \left\{ (\mu_1^{eau})^2 VAR(\ln T_2) + (\mu_2^{eau})^2 VAR(\ln T_1) \right\}$$

$$VAR(\rho_e d)|_{VAR(I_0/I)=0} = \left(\frac{\mu_2^{bois}}{\Delta} \right)^2 \left\{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_1^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_1^{bois}) \right\} + \left(\frac{\mu_1^{bois}}{\Delta} \right)^2 \left\{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_2^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_2^{bois}) \right\}$$

$$VAR(\rho_o d)|_{VAR(I_0/I)=0} = \left(\frac{\mu_2^{eau}}{\Delta} \right)^2 \left\{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_1^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_1^{bois}) \right\} + \left(\frac{\mu_1^{eau}}{\Delta} \right)^2 \left\{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_2^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_2^{bois}) \right\}$$

où :

T_1 : rapport I / I_0 pour l'énergie 1,

T_2 : rapport I / I_0 pour l'énergie 2,

t^{eau} : masse surfacique de l'eau ($\rho^{eau} d$),

t^{bois} : masse surfacique du bois ($\rho^{bois} d$).

REMARQUE : Nous avons détaillé la démarche analytique pour obtenir ces variances dans les annexes 1 et 2.

Les figures 4 et 5 présentent le résultat du calcul théorique de variances de $\rho_o d$ et $\rho_e d$ en fonction de la teneur en eau en utilisant la méthode analytique et la méthode stochastique. Pour le calcul nous avons considéré deux raies parfaitement mono-énergétiques à 20 keV et 38 keV, un échantillon de masse surfacique égal à $1,76 \text{ g cm}^{-2}$ et une durée de comptage de 15 minutes.

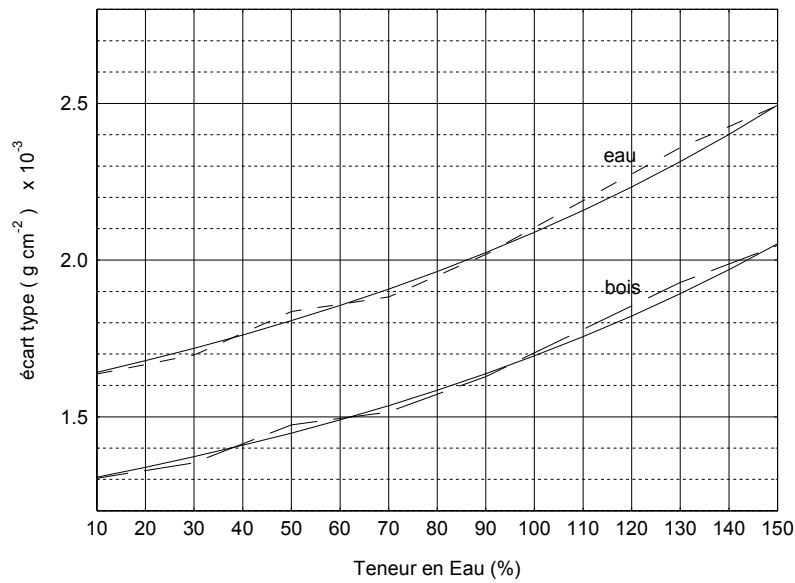


Figure 4. Ecart type de $\rho_o d$ et de $\rho_e d$ avec spectres bruités. La méthode analytique est représentée par lignes continues, la méthode stochastique par les lignes pointillées (2000 itérations).

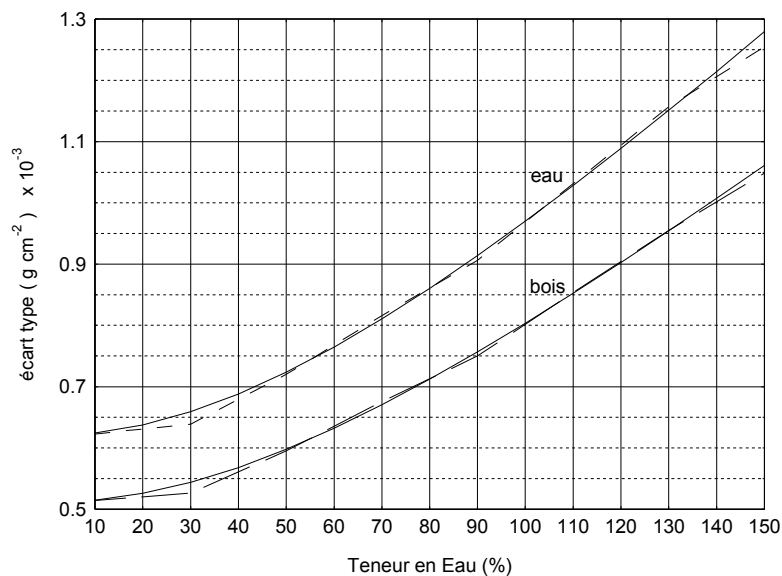


Figure 5. Ecart type de $\rho_o d$ et de $\rho_e d$ avec coefficient d'atténuation bruité. La méthode analytique est représentée par les lignes continues, la méthode stochastique par les lignes pointillées (2000 itérations).

2.2 Exploitation de la méthode stochastique

2.2.1 Le rapport signal/bruit

L'étude du cas bi-énergétique ou DEXA se révèle utile pour identifier les meilleures conditions de mesure dans le cas poly-énergétique à l'aide de notre méthode stochastique. Nous définissons le rapport signal/bruit (RSB) dans le calcul de la masse surfacique comme l'inverse du coefficient de variation σ / \bar{x} , selon :

$$RSB^{bois} = \frac{\rho_o d}{\sqrt{VAR(\rho_o d)}}$$

$$RSB^{eau} = \frac{\rho_e d}{\sqrt{VAR(\rho_e d)}}$$

Pour un échantillon avec une épaisseur, densité et teneur en eau déterminées, nous pouvons créer deux cartes du RSB calculé en fonction du couple des énergies E_1 et E_2 du spectre DEXA. Ces cartes permettent d'obtenir le couple d'énergies optimales qui maximisent le RSB.

Par exemple, la figure 6 représente le RSB pour le bois et l'eau pour $\rho_o d$ égal à $1,5 \text{ g cm}^{-2}$ et $\rho_e d$ égal à $1,0 \text{ g cm}^{-2}$, c'est-à-dire, pour $TH = 66,7\%$. Dans les conditions citées, le couple d'énergies qui maximisent le RSB correspond à 15 keV et 62 keV. Cependant, ce couple doit changer lorsque la teneur en eau de l'échantillon se modifie.

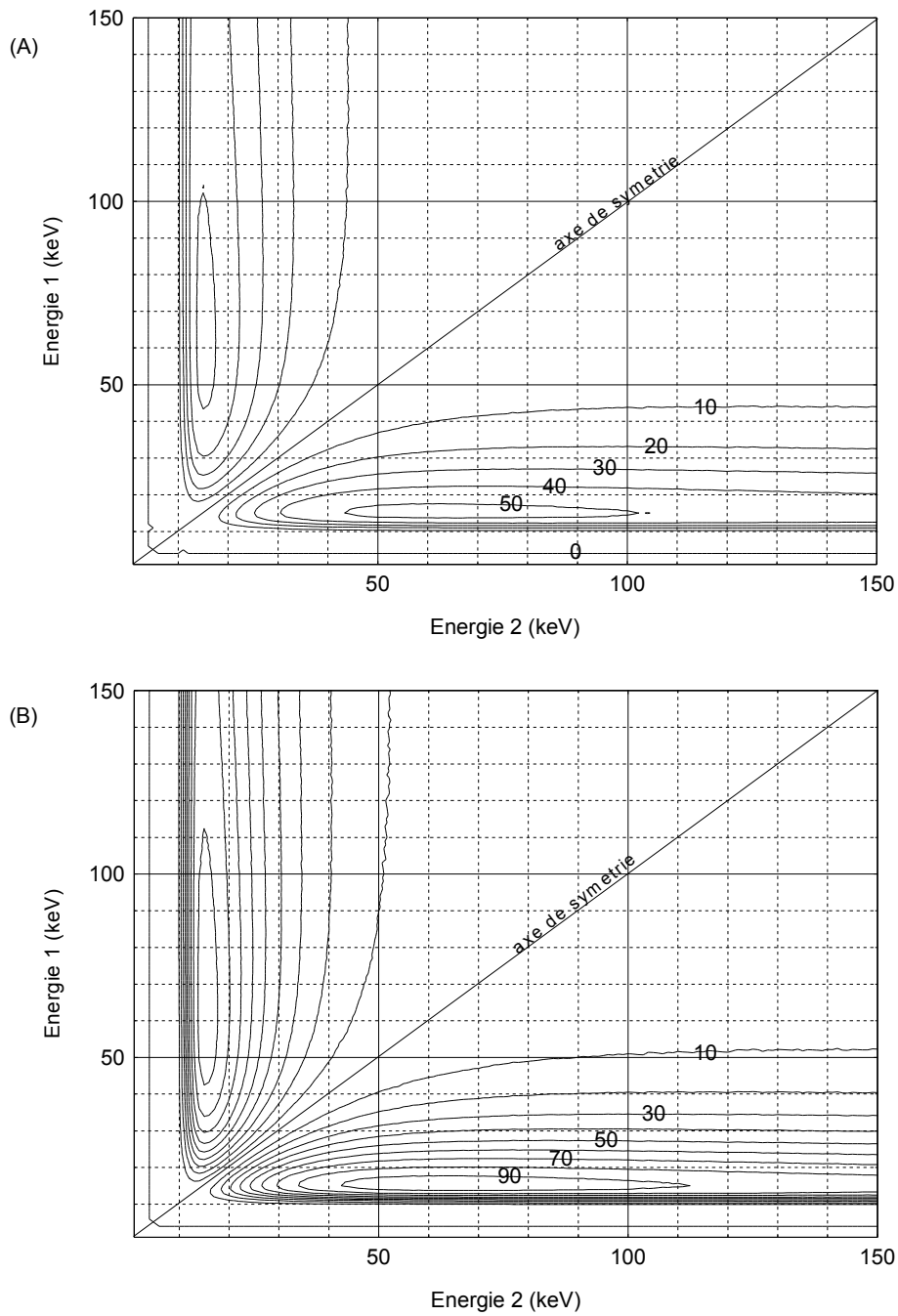


Figure 6. Carte du rapport signal/bruit pour $\rho_o d$ égal à $1,5 \text{ g cm}^{-2}$ et $\rho_e d$ égal à $1,0 \text{ g cm}^{-2}$. A) RSB pour $\rho_o d$ (B) RSB pour $\rho_e d$ (calcul pour 10 millions de photons et résolution énergétique de 1 keV).

Nous avons tracé dans la figure 7 les deux axes orthogonaux qui traversent le maximum de la figure 6. Nous mettons en évidence que le pic de E_1 est beaucoup plus étroit que le pic de E_2 . Cette analyse nous permet de conclure qu'il n'est pas recommandable d'utiliser un spectre incluant des énergies au-dessous de l'énergie optimale E_1 . En revanche, il existe une plage beaucoup plus ample pour la localisation de l'énergie E_2 .

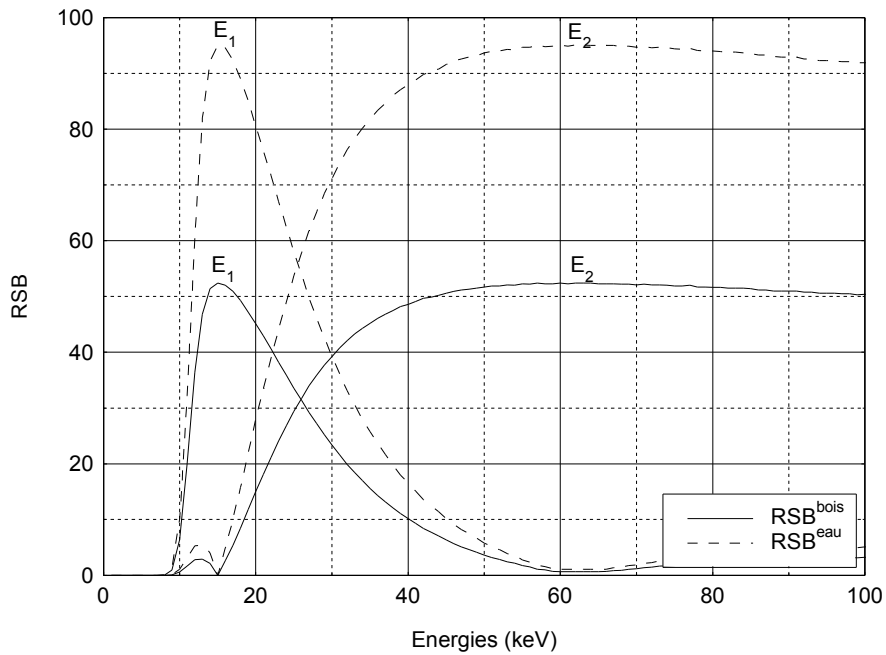


Figure 7. RSB^{bois} et RSB^{eau} calculés à partir de la figure 5 pour deux axes orthogonaux à 15 et 62 keV.

Il semble évident que pour maximiser le RSB, l'énergie photonique devra être plus forte, au fur et à mesure que la densité, ou l'épaisseur, ou la teneur en eau sont plus grandes. Pour démontrer cet effet nous représentons dans la figure 8 les valeurs optimales du RSB en fonction des différentes conditions. Par exemple, la série centrale du graphique représente le RSB pour une valeur de $\rho_o d$ égal à $1,5 \text{ g cm}^{-2}$ et teneurs en eau de 10%, 50% et 150%. Les deux autres séries représentent deux échantillons avec une masse surfacique anhydre de $0,3 \text{ g cm}^{-2}$ et $4,5 \text{ g cm}^{-2}$ respectivement.

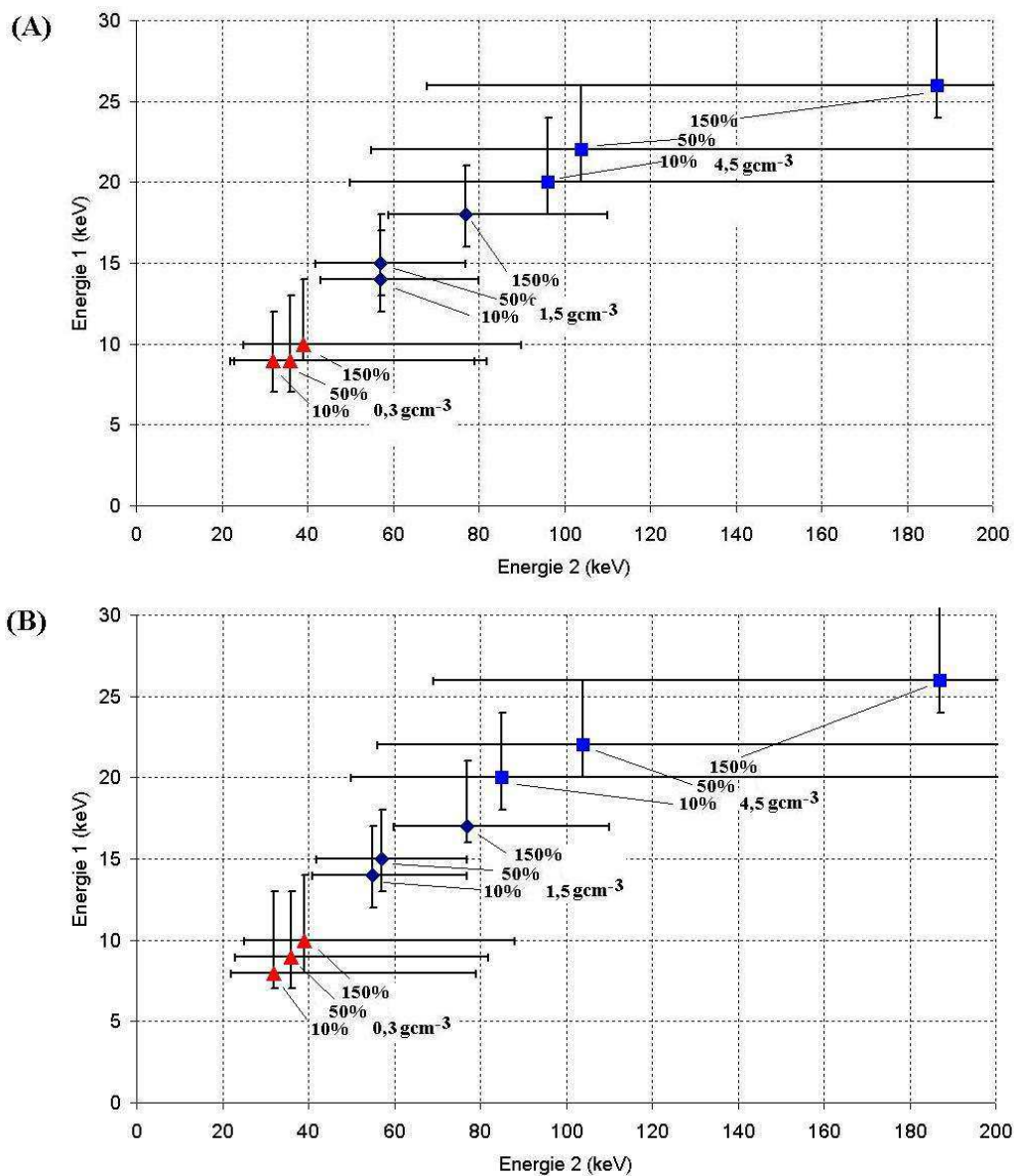


Figure 8. Carte représentant le couple d'énergies qui maximisent le RSB pour 3 différents échantillons à 3 teneurs en eau (10%, 50% et 150%). (A) RSB pour $\rho_o d$ (B) RSB pour $\rho_e d$ (barres représentent un RSB supérieur à 90% du RSB optimal).

2.2.2 Calcul de la précision par méthode stochastique

Compte tenu du fait que les valeurs de $\rho_o d$ et de $\rho_e d$ ne sont pas statistiquement indépendantes, le calcul du $VAR(TH)$ par l'approche analytique n'est pas envisageable. Cependant, nous pouvons calculer le RSB de la teneur en eau à partir d'un rayonnement bi-énergétique en utilisant l'approche de simulation stochastique décrite précédemment. Ainsi, la figure 9 représente le RSB^{TH} pour 3 échantillons avec masse surfacique anhydre de $0,3 \text{ g cm}^{-2}$, $1,5 \text{ g cm}^{-2}$ et $4,5 \text{ g cm}^{-2}$ respectivement.

Les résultats indiquent que pour l'échantillon de $0,3 \text{ g cm}^{-2}$ il est nécessaire de cumuler plus de 10 millions de photons incidents pour obtenir un RSB^{TH} supérieur à 10. Pour les échantillons de $1,5 \text{ g cm}^{-2}$ et $4,5 \text{ g cm}^{-2}$, il est nécessaire de cumuler un peu plus de 1 million de photons incidents pour obtenir un résultat similaire.

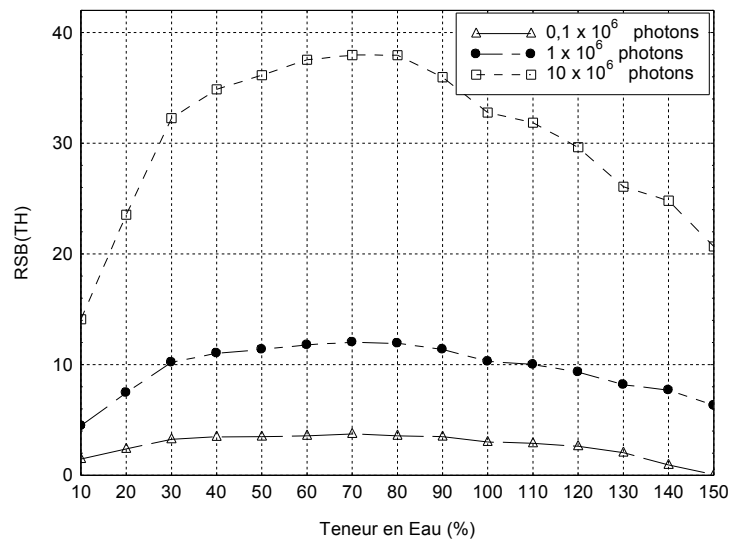
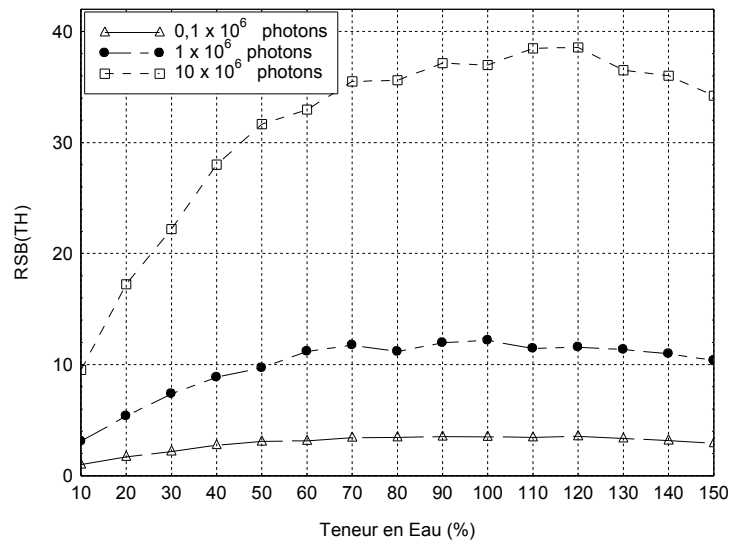
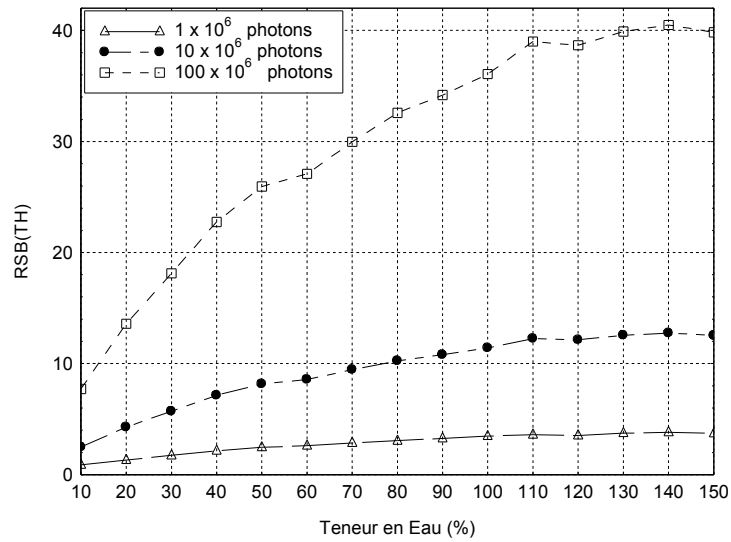


Figure 9. (a) RSB de la teneur en eau pour un échantillon avec $\rho_o d = 0,3 \text{ g cm}^{-2}$ (à 10 et 36 keV).

(b) RSB de la teneur en eau pour un échantillon avec $\rho_o d = 1,5 \text{ g cm}^{-2}$ (à 15 et 62 keV).

(c) RSB de la teneur en eau pour un échantillon avec $\rho_o d = 4,5 \text{ g cm}^{-2}$ (à 22 et 100 keV).

2.2.3 Dégradation d'un spectre bi-énergétique idéal

a) Largeur de raies

Dans la figure 10 nous comparons le résultat du calcul de RSB^{TH} d'un spectre bi-énergétique idéal (Dirac) avec celui d'un spectre bi-énergétique avec une largeur de raie de 4 keV, mais cumulant la même quantité de photons. Le résultat démontre que pour une même quantité de photons, l'utilisation d'un spectre bi-énergétique imparfait entraîne une réduction du RSB^{TH} par rapport à un spectre parfaitement bi-énergétique.

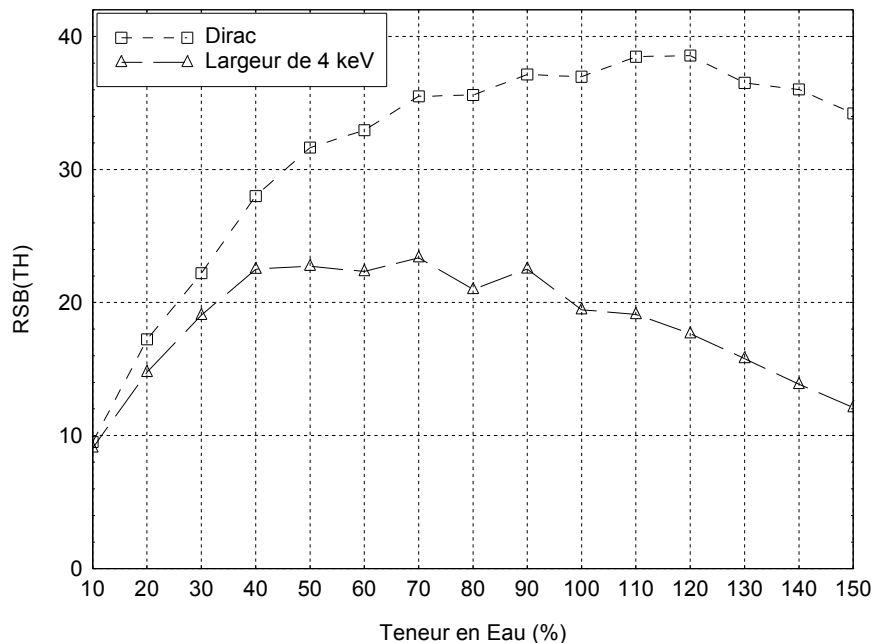


Figure 10. RSB^{TH} pour un spectre bi-énergétique (Dirac) et un spectre bi-modal avec une largeur de raie de 4 keV. ($\rho_o d = 1,5 \text{ g cm}^{-2}$, 10 millions de photons et raies centrées à 15 et 62 keV).

b) Equilibrage des deux raies

L'étude de l'équilibrage idéal entre l'intensité des raies E_1 et E_2 peut se révéler très utile pour le choix des spectres (Fig. 11). Le résultat montre un spectre incident avec une raie E_2 qui cumule 67% de photons est plus convenable qu'un spectre incident équilibré à 50%-50%.

Cependant, pour des résultats non présentés ici, nous obtenons un RSB^{TH} moins favorable avec une raie E_2 cumulant 80% des photons.

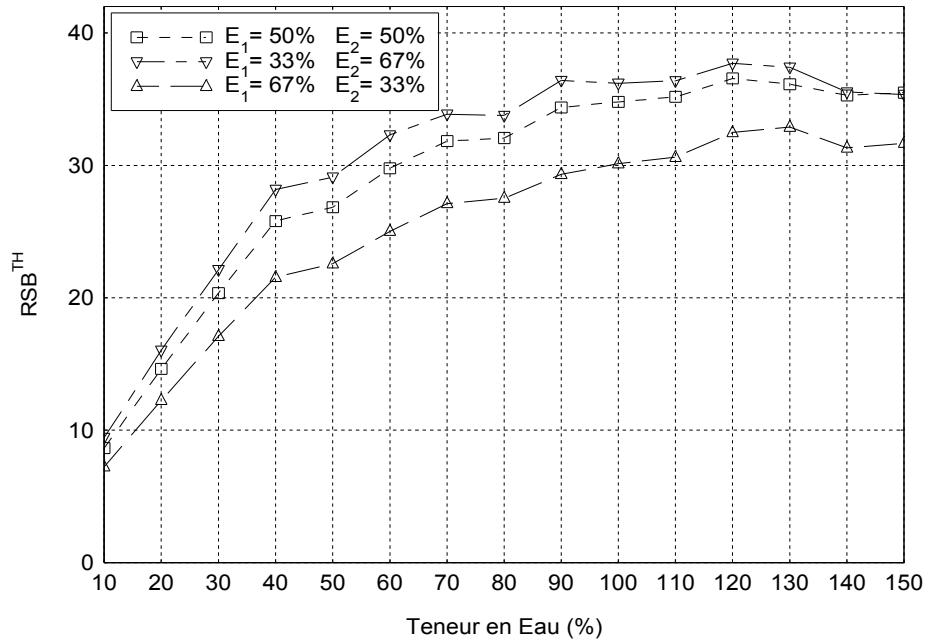


Figure 11. RSB^{TH} pour un spectre bi-énergétique (Dirac) avec des intensités différentes dans chaque pic. ($\rho_o d = 1,5 \text{ g cm}^{-2}$, 10 millions de photons et raies centrées à 15 et 62 keV).

2.3 Utilisation des spectres poly-énergétiques

2.3.1 Simulation de spectres continus

Compte tenu de la difficulté expérimentale de créer un spectre bi-énergétique avec des raies étroites, l'évaluation de l'effet du passage vers des spectres continus s'impose. Dans ce but, nous avons créé numériquement un ensemble de 4 spectres incidents. Chacun d'eux correspond à un demi-cercle avec une surface unitaire sous la courbe (Tableau IV.1 et Fig. 12).

Tableau IV.1. Gamme de spectres utilisés pour la simulation de RSB.

Nom de spectre	Limite inférieure (keV)	Limite supérieure (keV)	Centre (keV)
« Mou »	15	25	20
« Dur »	40	80	60
« Etendu »	15	80	47,5
« Bi-modal »	15 - 25	40 - 80	20 et 60

A partir des courbes, nous pouvons générer des spectres incidents comprenant plusieurs millions de photons, avec un taux de comptage et/ou temps de comptage voulu. Ensuite nous avons calculé le RSB^{TH} en fonction des différentes teneurs en eau.

La figure 13 présente les résultats pour les 4 spectres incidents créés numériquement. Nous pouvons observer que pour un même nombre de photons comptabilisés, le spectre « bi-modal » donne le RSB le plus fort car celui-ci est le plus proche d'un spectre bi-énergétique.

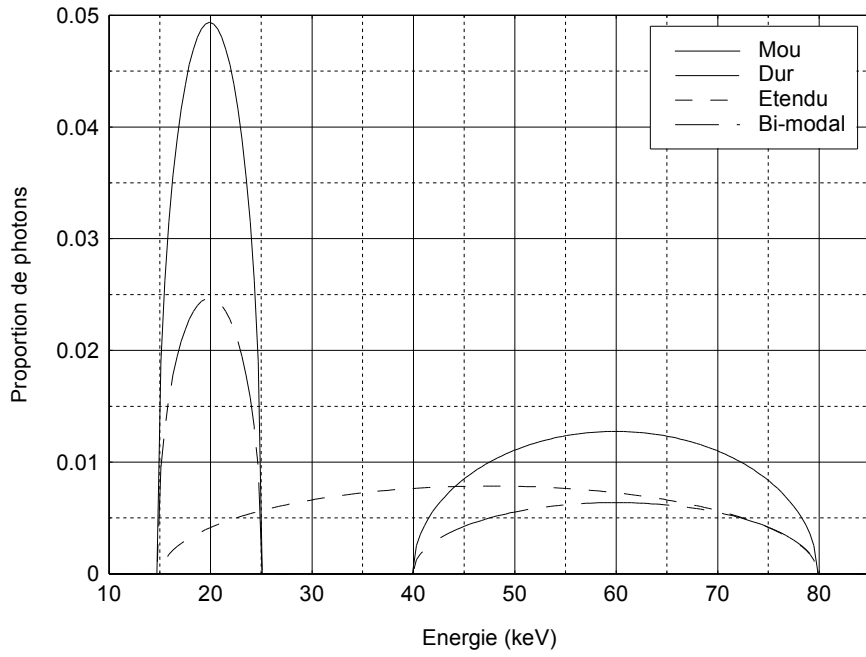


Figure 12. Gamme de spectres avec une surface unitaire.

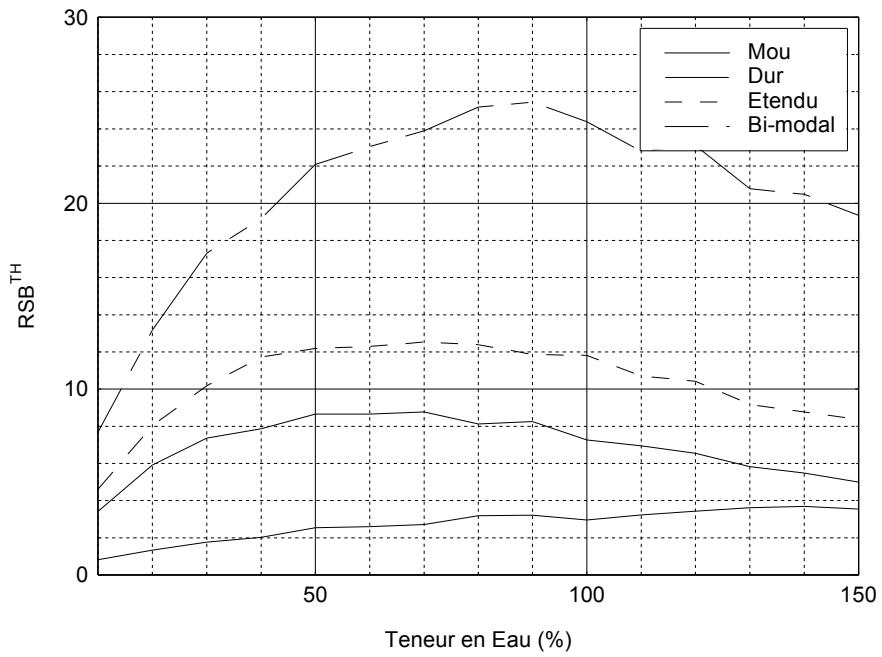


Figure 13. RSB^{TH} pour chacun des spectres créés numériquement en fonction de la teneur en eau.
(comptage total de photons de 10 millions et $\rho_o d$ égal à $1,5 \text{ g cm}^{-2}$)

2.3.2 Simulation de la durée d'acquisition

Nous avons augmenté graduellement la quantité de photons cumulés dans les spectres et nous avons calculé le RSB^{TH} à différents instants (avec TH constante). Les résultats sont représentés dans la figure 14 dans une échelle logarithmique.

Dans le meilleur cas, il est nécessaire de cumuler 2 millions de photons pour obtenir un RSB supérieur à 10 (spectre «bi-modal»); tandis que pour le spectre «dur» un RSB du même ordre est atteint avec 100 millions de photons. Pour ces conditions et avec un taux de comptage de 3000 photons s^{-1} , la durée d'acquisition atteindra environ 15 minutes pour le meilleur cas, et 9 heures pour le pire.

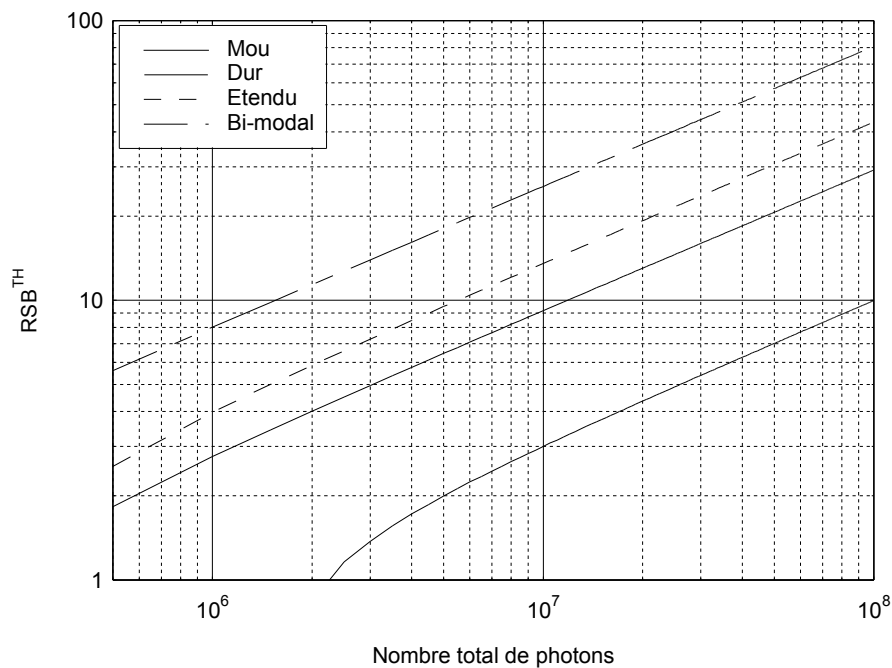


Figure 14. RSB^{TH} pour un chacun des spectres créés numériquement en fonction de la quantité totale de photons cumulés. ($\rho_o d$ égal à $1,5 \text{ g cm}^{-2}$ et TH égal à 70%).

2.4 Variabilité sur les coefficients d'atténuation

2.4.1 Incertitude sur $\mu_o(E)$ et $\mu_e(E)$ provenant de la constitution chimique

Dans la pratique, des différences de composition chimique structurale du bois et extractibles peuvent influencer les valeurs de $\mu_o(E)$. De même les sels minéraux de la sève influencent la valeur de $\mu_e(E)$. Pour estimer l'influence d'une différence de composition structurale du bois, nous pouvons utiliser des compositions moyennes acceptées pour l'ensemble des bois (Tableau I.1 et Tableau IV.2).

Tableau IV.2. Proportions élémentaires (%) en fonction de la composition chimique du bois, calculées à partir du tableau I.1.

Exemple de composition	C	H	O
Cellulose 50%			
Hémicelluloses 25%	48,3	7,0	44,7
Lignine 25%			
Cellulose 50%			
Hémicelluloses 30%	46,7	6,9	46,4
Lignine 20%			
Cellulose 40%			
Hémicelluloses 30%	49,9	7,0	43,0
Lignine 30%			
Cellulose 40%			
Hémicelluloses 35%	48,3	7,0	44,7
Lignine 25%			

La moyenne et l'écart type des proportions élémentaires pour ces 4 exemples de composition chimique donnent comme résultat : $48,3 \pm 1,3\%$ pour le carbone, $7,0 \pm 0,1\%$ pour l'hydrogène et $44,7 \pm 1,4\%$ pour l'oxygène. Ces proportions sont modifiées par les extractibles du bois. Or, nous avons utilisé ces proportions structurales pour estimer le coefficient de variation (C.V.) de $\mu_o(E)$ en négligeant l'effet des extractibles. Le calcul de l'écart type de $\mu_o(E)$ a été fait par tirage des nombres aléatoires distribués selon la courbe de Gauss. Comme résultat nous obtenons un C.V. autour de 2% (Fig. 15).

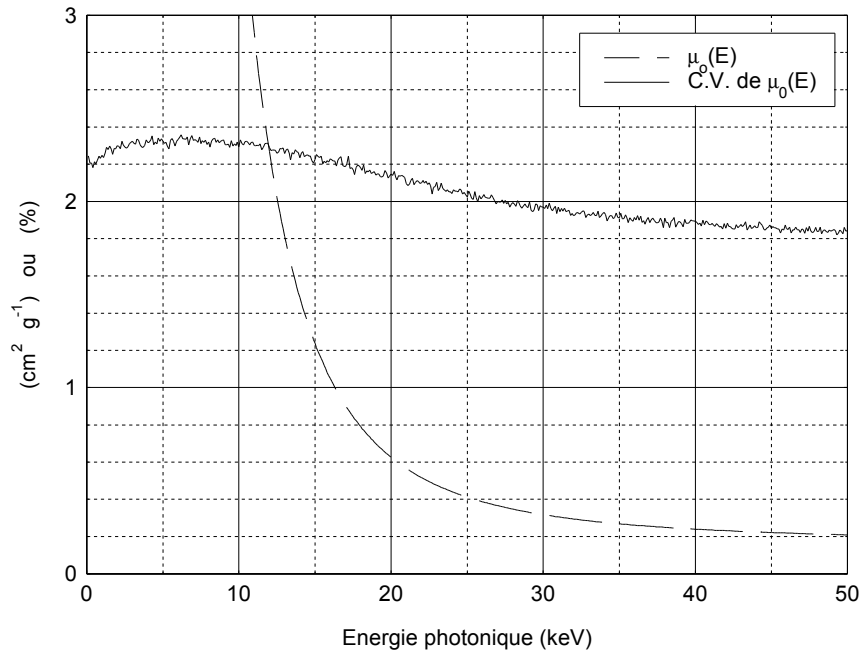


Figure 15. Coefficient de variation de $\mu_o(E)$ calculé par méthode stochastique. (10000 itérations).
(Coefficients d'atténuation de C, H et O calculés en utilisant XCOM).

2.4.2 Calcul de RSB^{TH} avec variabilité sur $\mu(E)$

En utilisant la méthode stochastique nous pouvons calculer le rapport signal/bruit de l'estimation de la teneur en eau (RSB^{TH}) généré pour la variabilité sur $\mu_o(E)$ que nous venons d'estimer.

La figure 16 présente RSB^{TH} calculé pour différents coefficients de variation mais sans variabilité dans le comptage de photons (valeurs indépendantes du temps de comptage).

D'autre part, la figure 17 présente le RSB^{TH} calculé avec les deux sources de variabilité. Nous pouvons en déduire que si nous acceptons comme valide la valeur de 2% de variation sur $\mu_o(E)$ comme sur $\mu_e(E)$, alors le RSB^{TH} ne dépassera pas 10, même pour des très longues durées d'acquisition. Or, même si nous considérons ce 2% comme pessimiste, il est évident que l'incertitude dans la valeur des coefficients d'atténuation influence largement la précision de la mesure.

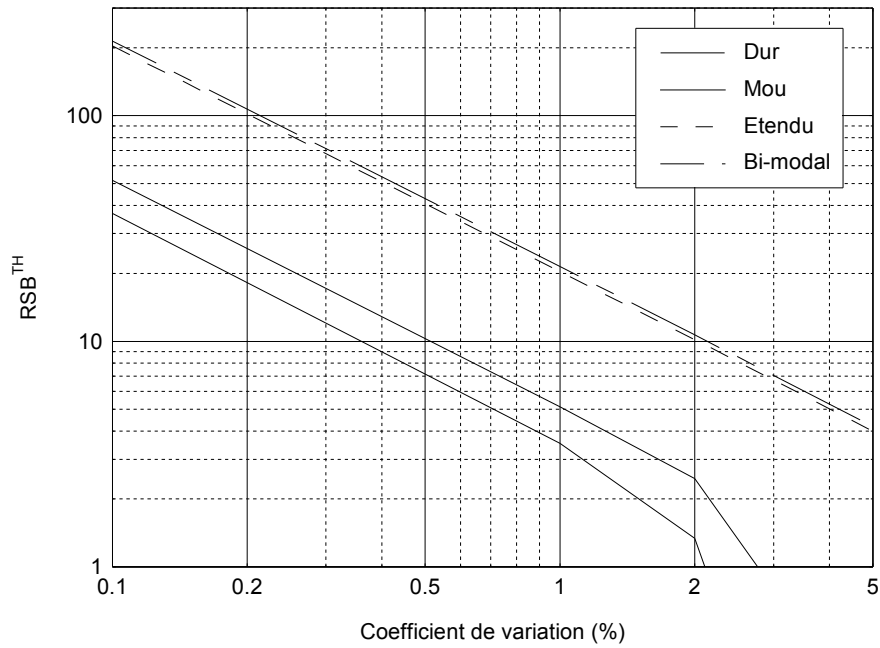


Figure 16. RSB^{TH} pour chacun des spectres créés numériquement en fonction du C.V. de $\mu_o(E)$. ($\rho_o d$ égal à $1,5 \text{ g cm}^{-2}$, TH égal à 70%).

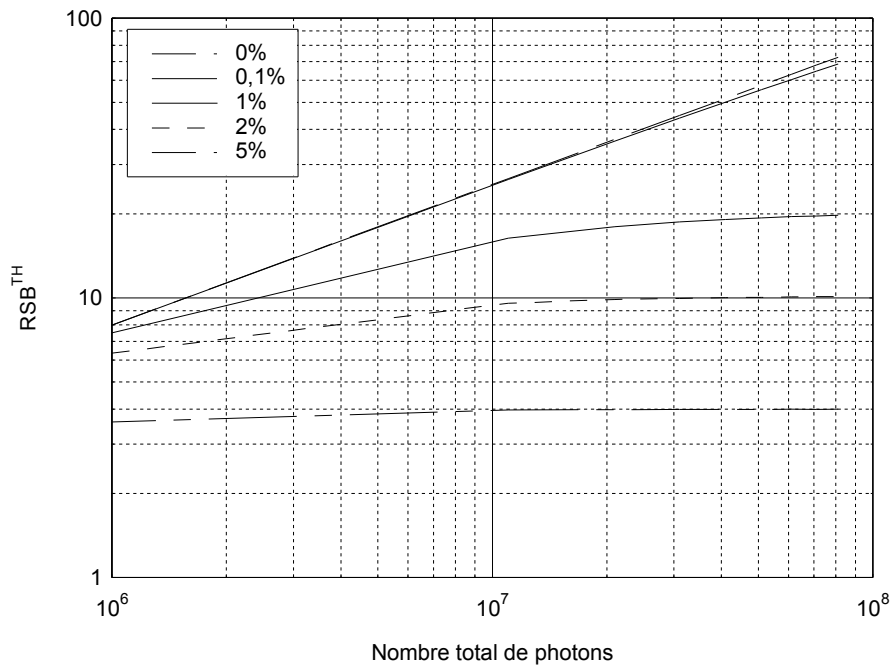


Figure 17. RSB^{TH} pour le spectre Bi-modal en fonction de la quantité cumulé de photons calculé pour différents C.V. de $\mu_o(E)$.

REMARQUE : Dans les calculs de RSB^{TH} présentés ci-dessus nous avons supposé un C.V. de $\mu_e(E)$ égal au C.V. de $\mu_o(E)$.

3. Démarche expérimentale

3.1 Description du matériel expérimental

3.1.1 La source de rayons X

Nous disposons d'un générateur de rayons X de cristallographie (marque *INEL* modèle XRG3000 en version prototype), qui est capable de fournir jusqu'à 60 kV et 50 mA. Il dispose d'une gaine standard avec deux tubes : l'un avec anticathode en Molybdène et l'autre avec anticathode en Cuivre. Dans ce chapitre nous utilisons le tube avec anticathode en Cuivre car il présente un spectre continu dans la plage d'intérêt (entre 15 et 60 keV).

Le système est refroidi par un flux d'eau avec un débit autour de 3 litres par minute avec une pression supérieure à 4 bars. Originellement, le système a été connecté au réseau d'eau potable du bâtiment, ce qui génère des problèmes de condensation de l'humidité de l'air pendant la période hivernale et entraîne une consommation d'eau inutile. Pour résoudre ces inconvénients, nous avons adapté un système de pompage d'eau à circuit semi-fermé qui permet de maintenir la température dans un niveau plus adéquat grâce à un renouvellement à faible débit.

Malheureusement, ce système présente quelques problèmes opérationnels qui limitent fortement son utilisation tels que : une instabilité de la consigne et des mini-coupures furtives à fortes tensions d'opération.

3.1.2 Collimation et détection du faisceau

Le faisceau issu de la source est conduit dans un tube en laiton de 20 mm d'épaisseur sur une longueur proche de 1 m. Cette conduite est connectée à une enceinte d'expérimentation construite à base de panneaux contreplaqués en bois-plomb.

Avant de pénétrer dans l'enceinte de sécurité, le faisceau est réduit par un collimateur en plomb de 1 cm de diamètre. En plus, à cet endroit il est possible de disposer les filtres permettant de durcir le faisceau.

L'échantillon est maintenu par un porte-échantillon capable de se déplacer verticalement et de tourner suivant l'axe du faisceau, entraîné par un système motorisé. (Ce système sera décrit en détail au chapitre V). A l'intérieur du porte-échantillon se place un collimateur en tungstène avec un diamètre de passage de 2,0 mm.

Le capteur est placé dans l'alignement du faisceau incident. La partie sensible de ce capteur est une diode spectrométrique en tellure de cadmium CdTe (modèle PX-100T de la marque *Amptek*). L'acquisition et traitement de données ont été réalisés par un amplificateur de signal modèle PX2T et par un analyseur multicanaux modèle MCA8000A du même fabricant. La chaîne d'acquisition est complétée par un PC qui commande les opérations par un programme écrit en Visual Basic 6.

3.2 Conditions de mesure retenues

3.2.1 Configuration de l'échantillon

Nous réalisons la mesure de la teneur en eau en utilisant une double cale : l'une en polyoxyméthylène ou « Kemetal » (CH_2O) qui présente une constitution atomique similaire à la cellulose ($C_6H_{12}O_6$). L'autre est une cale remplie d'eau déminéralisée. L'utilisation de ce matériau plastique à la place du bois se justifie par 2 raisons :

- La constitution chimique exacte d'un échantillon en bois et des ses extractibles est incertaine. Or, la méthode nécessite des coefficients d'atténuation précis qui sont mieux garantis avec un matériau standard.
- Compte tenu du grand nombre de photons qu'il est nécessaire de cumuler pour mesurer la teneur en eau du bois, le temps de comptage peut atteindre plusieurs heures. Or, la teneur

en eau de l'échantillon peut varier au cours de la mesure. Cependant l'ensemble Kemetal-eau représente un échantillon qui ressemble au bois humide, mais avec une teneur en eau constante.

Nous utilisons une cale constituée de la façon suivante : une colonne d'eau de 1,00 cm enfermée entre deux couches de Mylar, chacune avec 0,1 mm d'épaisseur et un block de Kemetal de 1,07 cm d'épaisseur (Fig. 18).

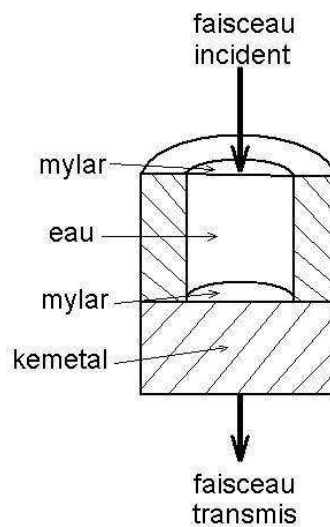


Figure 18. Schéma de l'échantillon.

Compte tenu de la faible épaisseur des couches de Mylar et la proximité de la composition entre le Mylar et le Kemetal, nous pouvons considérer l'échantillon comme un composant à deux phases : Kemetal et eau. L'épaisseur et la masse volumique pour chacune des phases conduisent aux masses surfaciques suivantes :

$$\rho_o d = 1,09 \text{ cm} \times 1,41 \text{ g cm}^{-3} = 1,54 \text{ g cm}^{-2}$$

$$\rho_e d = 1,00 \text{ cm} \times 1,00 \text{ g cm}^{-3} = 1,00 \text{ g cm}^{-2}$$

Dans ces conditions, l'échantillon représente une teneur en eau de 65%.

3.2.2 Dureté de spectre

En utilisant les modèles décrits précédemment, le couple d'énergies qui optimise la précision de la mesure de la teneur en eau correspond à 15 keV et 62 keV. Compte tenu des résultats présentés dans la figure 9, nous avons choisi de créer un spectre bi-modal au moyen de mesures consécutives.

Le choix des tensions d'alimentation est réalisé de façon à obtenir un spectre bi-modal avec un premier pic supérieur à 15 keV et un autre pic le plus proche possible de 62 keV (Fig. 6).

La consigne de faible énergie a été fixée à 22 kV. Nous avons réalisé un pré-filtrage du faisceau dans l'objectif de durcir le faisceau incident en éliminant les photons trop mous (<15 keV) qui sont préjudiciables pour la qualité de la mesure et qui contribueraient négativement à incrémenter le taux de comptage.

La consigne de forte énergie a été fixée à 58 kV car c'est la limite opérationnelle du générateur de rayons X. Pour les mêmes raisons que ci-dessus, nous avons réalisé un pré-filtrage du faisceau incident.

Le pré-filtrage a été réalisé au moyen de plaques d'aluminium qui ne perturbe pas le spectre parce qu'il présente ses transitions et bords K à très faible énergie (Annexe II.1). Evidemment, l'épaisseur des filtres est différente pour les deux conditions de mesure.

3.2.3 Déroulement de l'acquisition

L'acquisition se déroule comme suit :

- a) Réglage du générateur X avec la consigne de faible énergie, pour laquelle nous enregistrons pendant quelques heures le spectre incident (sans échantillon).
- b) Enregistrement du spectre transmis (avec échantillon) pendant quelques heures.
- c) Nouvel enregistrement du spectre incident.
- d) Réglage du générateur X avec la consigne de forte énergie, pour laquelle nous enregistrons pendant quelques heures le spectre incident.
- e) Enregistrement du spectre transmis (avec échantillon).
- f) Nouvel enregistrement du spectre incident.

REMARQUES :

- Opérationnellement, dans l'objectif d'étudier la stabilité temporelle du rayonnement mais aussi pour détecter et nous affranchir des mini-coupures furtives, nous réalisons une acquisition de spectre toutes les 60 secondes.
- Entre chaque mesure nous faisons tourner l'échantillon de 15° , autour d'un axe coïncidant avec le faisceau incident.
- La durée réelle d'acquisition dépasse 32 heures car nous cumulons au moins 8 heures d'acquisition pour chacune des 4 conditions de mesure.

4. Résultats expérimentaux

4.1 Allure des spectres

Les spectres incidents et transmis obtenus pour la consigne de faible et de forte énergie sont représentés dans la figure 19.

Il faut noter que pour la consigne de forte énergie, nous avons obtenu un spectre bi-modal. Cependant, la « colline » étalée autour de 18 keV ne peut pas exister dans la réalité, ainsi, elle doit correspondre à un artefact du capteur. Compte tenu que le pic principal se place autour de 46 keV, c'est-à-dire, à 28 keV d'écartement par rapport au petit pic, nous pouvons expliquer le pic à gauche comme un pic d'échappement du capteur. Il faut noter que le Tellure présente ses transitions K_{α} et K_{β} à 27,5 et 31,0 keV respectivement (Annexe II.1).

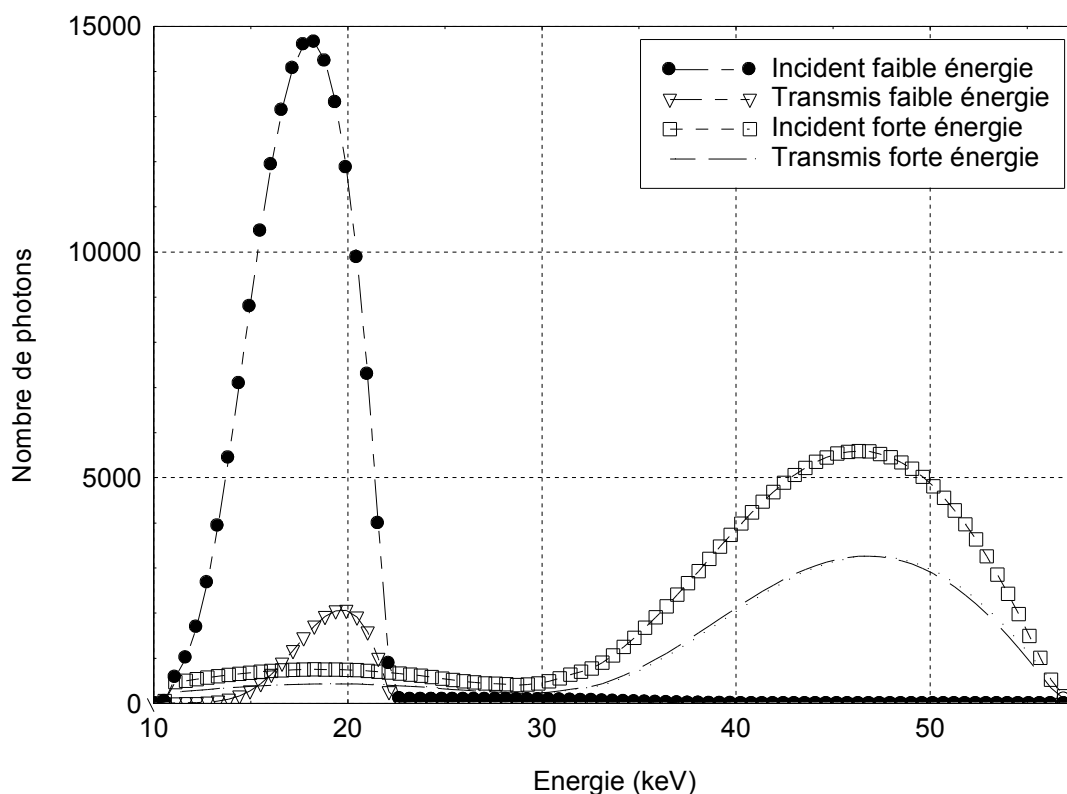


Figure 19. Spectres incidents et transmis obtenus pour une durée d'acquisition de presque 8 heures (résultats moyennés toutes les 60 secondes).

Le calcul du coefficient de transmission est présenté sous la forme de $\ln(I_o/I)$ dans la figure 20 (calculs pour une durée d'acquisition de 416 minutes).

Dans la même figure sont représentés les coefficients d'atténuation du Kemetal et de l'eau calculés par XCOM. Nous observons que les côtés gauches des courbes $\ln(I_o/I)$ présentent une allure éloignée du comportement « normal ». Nous pouvons expliquer ce problème comme la conséquence : (a) du phénomène de recombinaison de charges et (b) de l'apparition du pic d'échappement par l'interaction photoélectrique incomplète des photons dans le capteur.

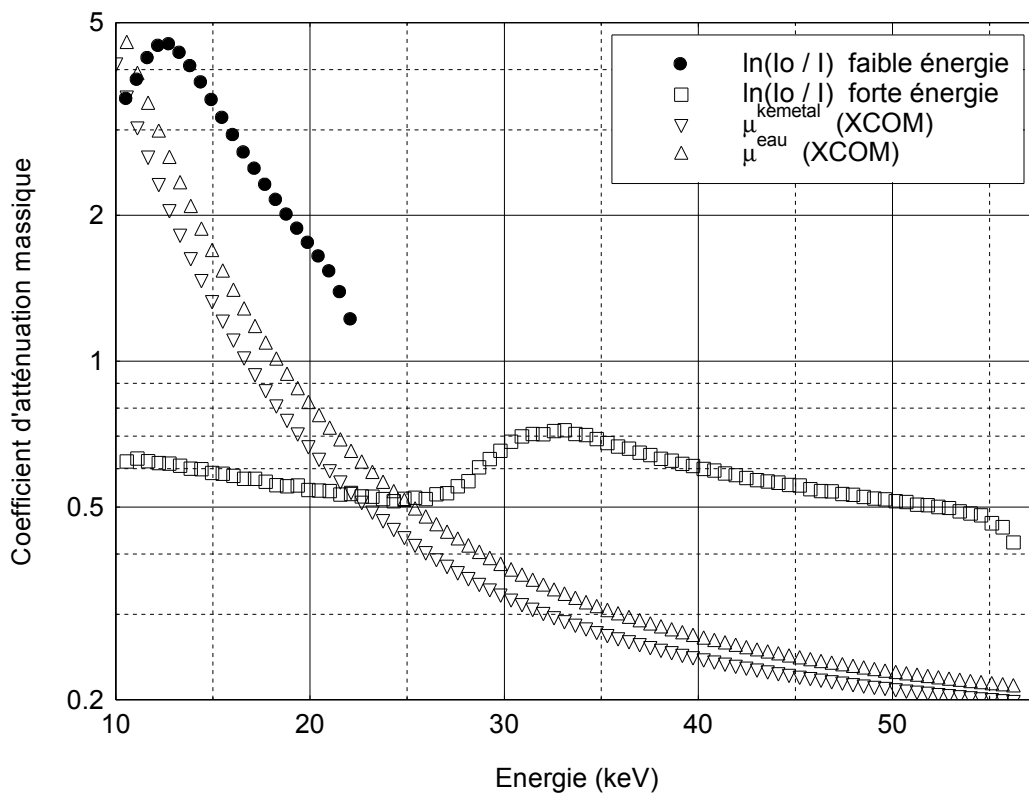


Figure 20. Calcul de $\ln(I_o/I)$ expérimental et courbes de $\mu_o(E)$ et $\mu_e(E)$ selon XCOM.

4.2 Calcul de masses surfaciques

Compte tenu de l'allure de la courbe $\ln(I_o / I)$, il est nécessaire de déterminer les deux plages qui présentent les valeurs exploitables. Les plages qui ont été utilisées pour lancer l'algorithme d'identification simultanée des masses surfaciques sont de 15,5 à 21 keV et de 35 à 52 keV.

Les résultats de l'identification de phases en fonction de la durée d'acquisition sont présentés dans la figure 21. Au bout d'un temps de mesure de 416 minutes les estimations donnent : $\rho_o d = 1,11 \text{ g cm}^{-2}$ et $\rho_e d = 0,90 \text{ g cm}^{-2}$ pour des valeurs réelles de $1,54 \text{ g cm}^{-2}$ et de $1,00 \text{ g cm}^{-2}$ respectivement. Parallèlement, la valeur de $\rho_o d + \rho_e d$ estimée est $2,01 \text{ g cm}^{-2}$ au lieu de $2,54 \text{ g cm}^{-2}$ réelles.

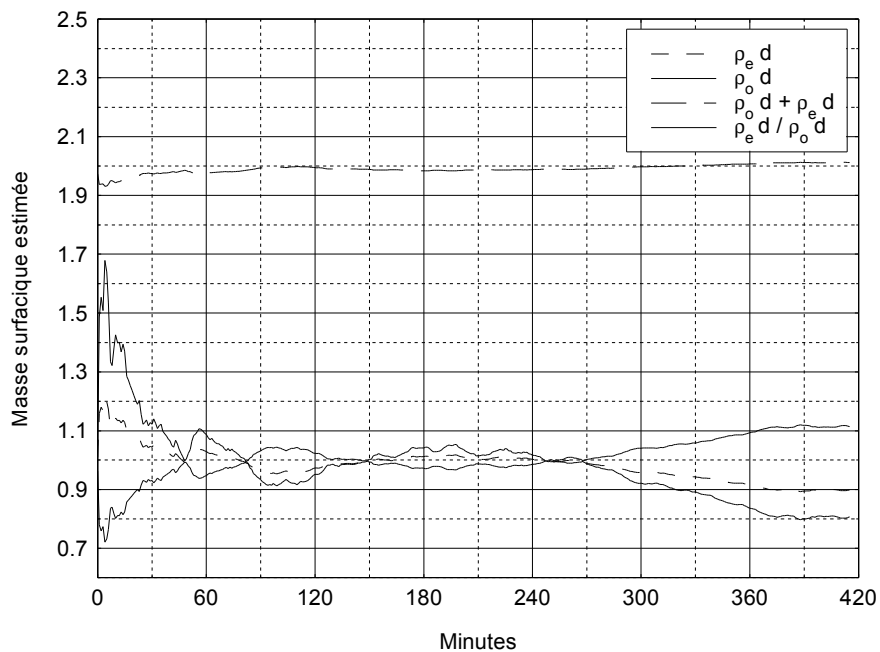


Figure 21. Estimations de masses surfaciques et de la teneur en eau en fonction de la quantité des photons.
(Le rapport $\rho_e d / \rho_o d$ est la teneur en eau)

Malheureusement, les valeurs estimées sont très éloignées des valeurs réelles est démontrent un échec de la méthode. Or, une question se pose : est-ce que notre chaîne de mesure est capable de réaliser des mesures quantitatives suffisamment précises ? Pour répondre à cette

question nous pouvons réaliser l'identification de l'épaisseur d'un échantillon réalisé dans un matériau homogène.

4.3 Identification de l'épaisseur des matériaux

Nous avons retenu les mêmes cales de Kemetal et d'eau décrites précédemment mais cette fois elles ont été mesurées séparément. Nous avons réalisé deux mesures pour chaque cale : l'une à 25 kV (« faisceau mou ») et l'autre à 50 kV (« faisceau dur »).

Les résultats de la mesure de la masse surfacique de la cale en Kemetal en fonction du temps d'acquisition sont présentés dans la figure 22. Les deux résultats sont différents entre eux (1,41 et 1,47 g cm⁻² pour le faisceau mou et le faisceau dur respectivement). Ces résultats sont éloignés de 6,6% et 2,6% de la valeur réelle de la masse surfacique de l'échantillon (1,51 g cm⁻²).

Les résultats de la mesure de la masse surfacique de la cale d'eau en fonction du temps d'acquisition sont présentés dans la figure 23. Les deux résultats sont différents entre eux (0,93 et 0,97 g cm⁻² pour le faisceau mou et le faisceau dur respectivement). Ces résultats sont éloignés de 7,0% et 3,0% de la valeur réelle de la masse surfacique de l'échantillon.

En utilisant un capteur spectrométrique au gaz, Perré et Thiercelin (1997) ont réalisé une identification à peu près similaire pour des échantillons en bois d'alisier torminal⁵ à 12% de teneur en eau et des cales en eau déminéralisée. Ils ont mesuré plusieurs échantillons (toutes d'épaisseur inférieure à 1 cm) avec un faisceau incident poly-énergétique généré à 24 kV mais constitué principalement par la raie Cu K α . Ils ont obtenu une erreur de mesure qui atteint 3,6% dans le cas le plus défavorable et 0,6% dans le cas le plus favorable.

⁵ *Sorbus torminalis* : essence réputée en raison de l'homogénéité spatiale du bois.

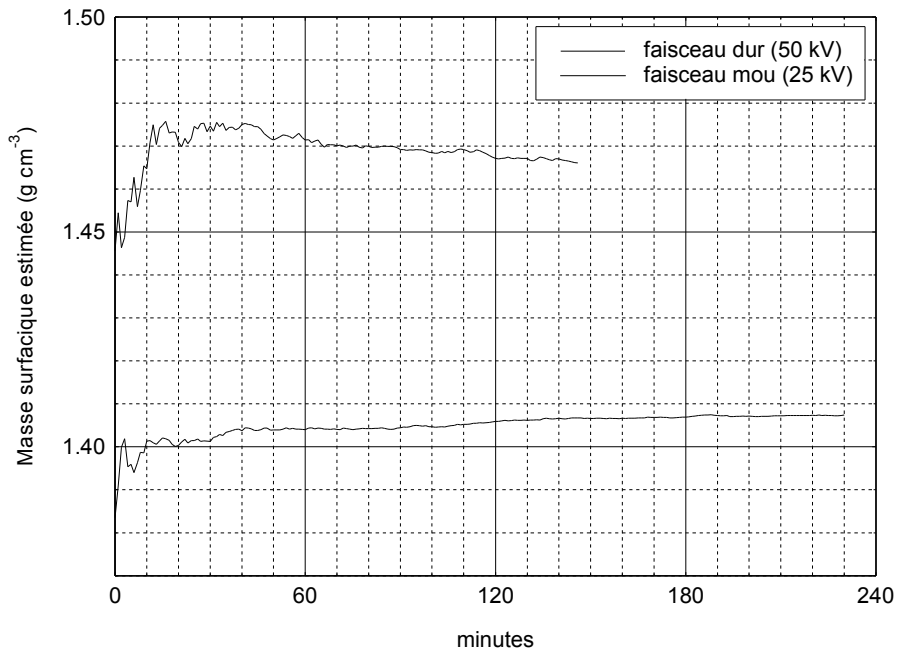


Figure 22. Estimation de ρd d'un échantillon de Kemetal en fonction de la durée d'acquisition. (Deux essais différents l'un à 50 kV et l'autre à 25 kV).

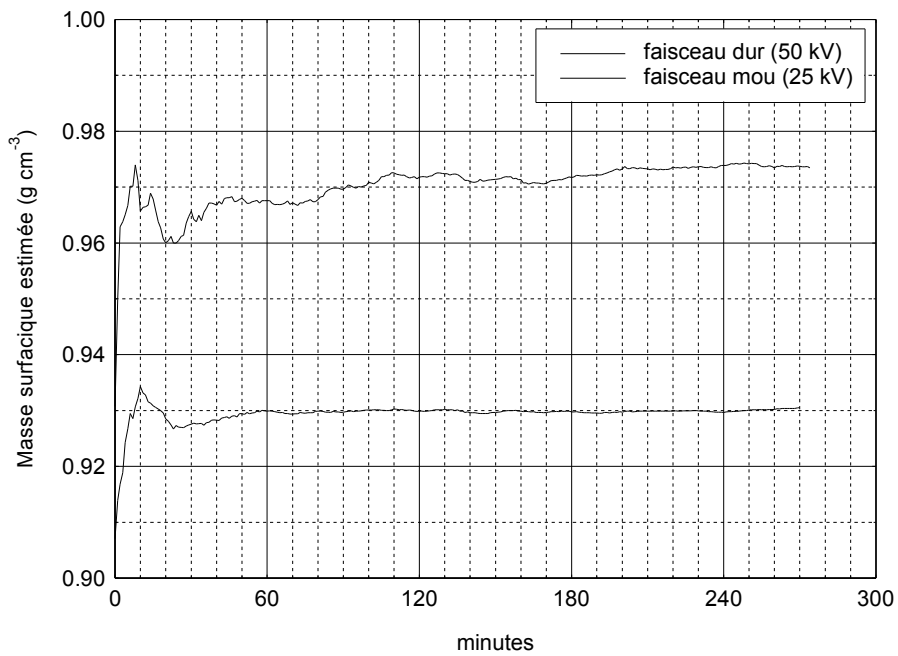


Figure 23. Estimation de ρd d'un échantillon d'eau en fonction de la durée d'acquisition. (Deux essais différents l'un à 50 kV et l'autre à 25 kV).

4.4 Identification utilisant les coefficients d'atténuation expérimentaux

Le résultat précédent a été utilisé pour obtenir des coefficients d'atténuation expérimentaux. Nous avons utilisé ces coefficients d'atténuation pour l'identification des phases. Nous présentons les résultats obtenus en fonction de la durée d'acquisition dans la figure 24. Au bout d'un temps de mesure de 416 minutes les estimations donnent : $\rho_o d = 0,63 \text{ g cm}^{-2}$ et $\rho_e d = 1,73 \text{ g cm}^{-2}$ pour des valeurs réelles de $1,54 \text{ g cm}^{-2}$ et de $1,00 \text{ g cm}^{-2}$ respectivement. Parallèlement, la valeur de $\rho_o d + \rho_e d$ estimé est $2,36 \text{ g cm}^{-2}$ au lieu de $2,54 \text{ g cm}^{-2}$ réelles.

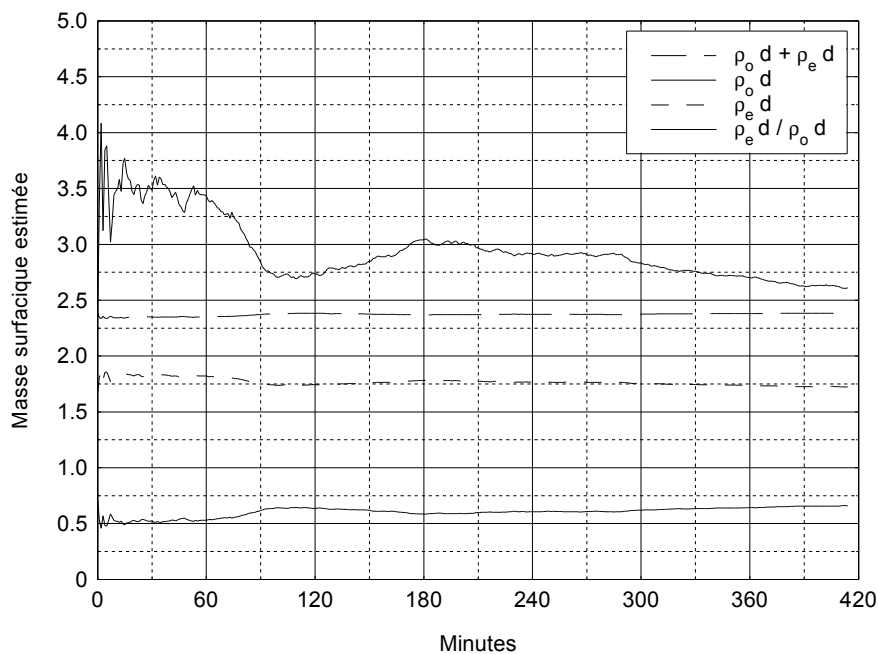


Figure 24. Estimations de masses surfaciques et de la teneur en eau en fonction de la quantité des photons.
(Le rapport $\rho_e d / \rho_o d$ est la teneur en eau)

Malheureusement les valeurs estimées sont très éloignées des valeurs réelles et démontrent un nouvel échec de la méthode. Or, l'utilisation des courbes d'atténuation du NIST semble donner des résultats moins mauvais que l'utilisation des courbes expérimentales. Cependant, ce constat doit être revu avec plus de détail. Par exemple, l'estimation globale pour $\rho_o d +$

$\rho_e d$ a passé de 2,01 à 2,36 $g\ cm^{-2}$ par l'utilisation des coefficients d'atténuation expérimentales au lieu des ceux de XCOM.

Les figures 20 à 23 présentent une faible oscillation de l'estimation de $\mu_o(E)$ et de $\mu_e(E)$ en fonction du nombre de photons cumulés. C'est-à-dire, l'erreur d'identification (l'écartement entre la valeur estimée et la valeur réelle) est presque indépendante du temps de comptage. En d'autres mots, notre méthode par atténuation de rayons X est « précise » mais peu « exacte ».

Jusqu'ici une approche stochastique nous a permis d'estimer la précision de la méthode d'identification, néanmoins, cette approche est incapable d'estimer l'exactitude d'estimation de $\mu_o(E)$ et de $\mu_e(E)$.

L'exactitude des estimations dépend des pentes de $\mu_o(E)$, $\mu_e(E)$ et $\ln\{I_0(E)/I(E)\}$. La courbe $\ln\{I_0(E)/I(E)\}$ doit présenter une « pente » intermédiaire entre la pente de $\mu_o(E)$ et la pente de $\mu_e(E)$. Nous pouvons mettre en évidence ce constat en calculant les rapports $\ln\{I_0(E)/I(E)\}/\mu_o(E)$ et $\ln\{I_0(E)/I(E)\}/\mu_e(E)$ (Fig. 25).

Lorsque nous utilisons des coefficients d'atténuation expérimentaux, ces courbes présentent une allure « normale ». Cependant, en utilisant des coefficients d'atténuation du NIST ce constat est moins clair.

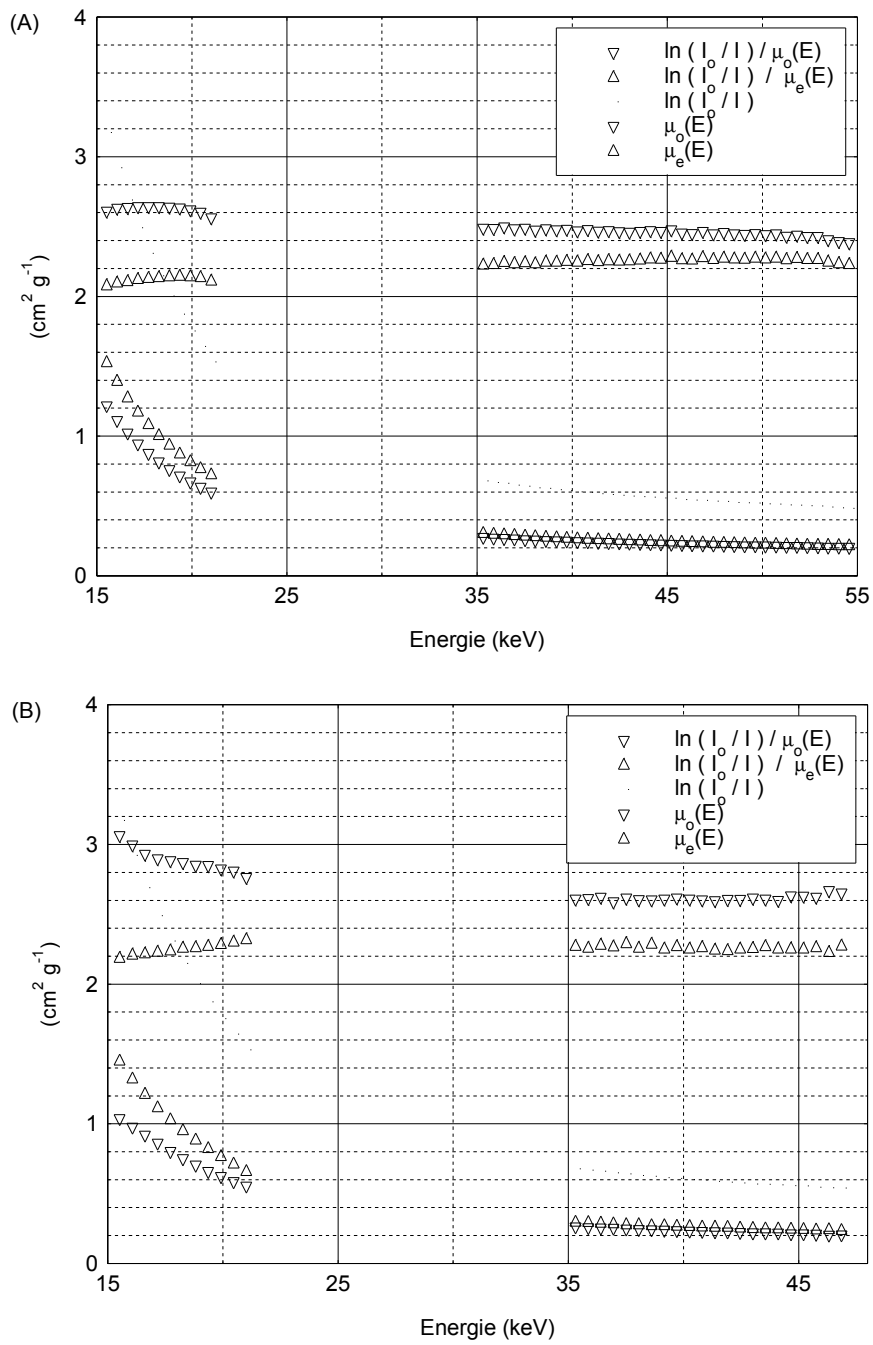


Figure 25. Courbes de $\mu_0(E)$, $\mu_e(E)$, $\ln\{I_0(E)/I(E)\}$ et le rapport entre elles.
 (a) En utilisant XCOM (b) En utilisant les données expérimentales.

5. Conclusion et Perspectives

Nous avons réalisé des mesures spectrométriques d'atténuation d'un faisceau de rayons X pour un échantillon simulant la composition chimique du bois humide (Kemetal). Cependant, l'application d'une méthode d'identification des phases (phase solide et eau) a été infructueuse.

Le comportement du capteur joue un rôle prépondérant dans la faisabilité de la méthode d'identification car elle est basée à partir des courbes d'atténuation expérimentales. Malheureusement le capteur utilisé semble générer des spectres trop altérés pour empêcher d'obtenir des courbes d'atténuation exploitables dans le but de réaliser des mesures quantitatives fiables.

Bien que la mesure de la teneur du bois présentée dans ce chapitre constitue un échec, nous pouvons souligner deux outils numériques qui ont été mis en place :

- Un outil pour évaluer quantitativement la teneur en eau d'un échantillon de bois par l'atténuation d'un faisceau de rayons X poly-énergétique au moyen d'une méthode inverse.
- Un outil de simulation stochastique capable d'évaluer la précision de l'identification de phases par traitement numérique des spectres poly-énergétiques continus. (Il faut souligner que l'outil peut être utilisé convenablement pour des matériaux différents du bois).

Aux chapitres suivants nous essayerons d'exploiter d'une façon différente la technologie de génération et de détection de rayons X dont nous disposons, dans l'objectif de nous affranchir des inconvénients mis en évidence dans ce chapitre.

ANNEXE 1

Calcul de la variance de la masse surfacique avec variance en I et I₀

Au deuxième chapitre, nous avons vu que la solution au système d'équations défini par la méthode DEXA est donné par :

$$t^{eau} = \frac{\mu_1^{bois} \ln T_2 - \mu_2^{bois} \ln T_1}{\Delta} \quad \text{et} \quad t^{bois} = \frac{\mu_2^{eau} \ln T_1 - \mu_1^{eau} \ln T_2}{\Delta}$$

Avec : $\Delta = \det(M)$

D'autre part, la loi de propagation des erreurs établi que :

$$\epsilon_Z^2 = \sum \left\| \frac{\partial Z}{\partial x_i} \right\|^2 \epsilon_{x_i}^2$$

En appliquant à t^{eau} :

$$VAR(t^{eau}) = \left(\frac{\partial t^{eau}}{\partial \ln T_2} \right)^2 VAR(\ln T_2) + \left(\frac{\partial t^{eau}}{\partial \ln T_1} \right)^2 VAR(\ln T_1)$$

$$VAR(t^{eau}) = \left(\frac{\mu_1^{bois}}{\Delta} \right)^2 VAR(\ln T_2) + \left(\frac{\mu_2^{bois}}{\Delta} \right)^2 VAR(\ln T_1)$$

$$VAR(t^{eau}) = \frac{1}{\Delta^2} \left\{ (\mu_1^{bois})^2 VAR(\ln T_2) + (\mu_2^{bois})^2 VAR(\ln T_1) \right\}$$

Similairement pour t^{bois} nous obtenons :

$$VAR(t^{bois}) = \frac{1}{\Delta^2} \left\{ (\mu_1^{eau})^2 VAR(\ln T_2) + (\mu_2^{eau})^2 VAR(\ln T_1) \right\}$$

Alors, en appliquant $\ln(T)$:

$$VAR(\ln(T)) = VAR(\ln(I/I_0))$$

$$VAR(\ln(T)) = \left[\frac{\partial(\ln(I/I_0))}{\partial I} \right]^2 VAR(I) + \left[\frac{\partial(\ln(I/I_0))}{\partial I_0} \right]^2 VAR(I_0)$$

$$VAR(\ln(T)) = \left[\frac{\partial(\ln(I))}{\partial I} - \frac{\partial(\ln(I_0))}{\partial I} \right]^2 VAR(I) + \left[\frac{\partial(\ln(I))}{\partial I_0} - \frac{\partial(\ln(I_0))}{\partial I_0} \right]^2 VAR(I_0)$$

$$VAR(\ln(T)) = \left[\frac{1}{N} - 0 \right]^2 VAR(I) + \left[0 - \frac{1}{N_0} \right]^2 VAR(I_0)$$

Par les propriétés de la distribution de Poisson $VAR(I_0) = N_0$,

Or, comme l'atténuation est régie par une distribution binomiale et le produit d'une distribution de Poisson et d'une binomiale rend une distribution de Poisson, nous obtenons :

$$VAR(I) = N$$

Ainsi :

$$VAR(\ln(T)) = \left[\frac{1}{N} \right]^2 N + \left[\frac{-1}{N_0} \right]^2 N_0$$

$$VAR(\ln(T)) = \frac{N + N_0}{N \cdot N_0}$$

ANNEXE 2

Calcul de la variance de la masse surfacique avec variance en $\mu_o(E)$ et $\mu_e(E)$.

Nous pouvons propager la variance des coefficients d'atténuation sur ρd selon :

$$VAR(t^j) = \sum \left\| \frac{\partial t^j}{\partial \mu_{ij}} \right\|^2 VAR(\mu_{ij})$$

En appliquant à t^{eau} :

$$\begin{aligned} VAR(t^{eau}) = & \left(\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{eau}} \right)^2 VAR(\mu_1^{eau}) + \left(\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_2^{eau}} \right)^2 VAR(\mu_2^{eau}) + \\ & \left(\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}} \right)^2 VAR(\mu_1^{bois}) + \left(\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_2^{bois}} \right)^2 VAR(\mu_2^{bois}) \end{aligned}$$

Alors :

$$\begin{aligned} \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{eau}} &= \frac{\partial}{\partial \mu_1^{eau}} \left(\frac{\mu_1^{bois} \ln T_2 - \mu_2^{bois} \ln T_1}{\mu_1^{eau} \mu_2^{bois} - \mu_2^{eau} \mu_1^{bois}} \right) \\ \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{eau}} &= \frac{\mu_2^{bois} (\mu_1^{bois} \ln T_2 - \mu_2^{bois} \ln T_1)}{(\mu_1^{eau} \mu_2^{bois} - \mu_2^{eau} \mu_1^{bois})^2} \\ \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{eau}} &= \frac{\mu_2^{bois} \times t^{eau}}{\Delta} \end{aligned}$$

Similairement pour μ_2^{eau} , nous obtenons :

$$\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_2^{eau}} = \frac{-\mu_1^{bois} \times t^{eau}}{\Delta}$$

Dérivant par rapport à μ_1^{bois} :

$$\begin{aligned} \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}} &= \frac{\partial}{\partial \mu_1^{bois}} \left(\frac{\mu_1^{bois} \ln T_2 - \mu_2^{bois} \ln T_1}{\mu_1^{eau} \mu_2^{bois} - \mu_2^{eau} \mu_1^{bois}} \right) \\ \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}} &= \frac{\ln T_2 (\mu_1^{eau} \mu_2^{bois} - \mu_2^{eau} \mu_1^{bois}) + \mu_2^{eau} (\mu_1^{bois} \ln T_2 - \mu_2^{bois} \ln T_1)}{(\mu_1^{eau} \mu_2^{bois} - \mu_2^{eau} \mu_1^{bois})^2} \\ \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}} &= \frac{\ln T_2 \mu_1^{eau} \mu_2^{bois} - \ln T_1 \mu_2^{eau} \mu_2^{bois}}{\Delta^2} \\ \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}} &= \frac{\mu_2^{bois} (\ln T_2 \mu_1^{eau} - \ln T_1 \mu_2^{eau})}{\Delta^2} \\ \frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}} &= \frac{\mu_2^{bois} t^{bois}}{\Delta} \end{aligned}$$

Similairement pour μ_2^{bois} , nous obtenons :

$$\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_2^{bois}} = \frac{-\mu_1^{bois} t^{bois}}{\Delta}$$

Après remplacement de $\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{eau}}$, $\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_2^{eau}}$, $\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_1^{bois}}$ et $\frac{\partial t^{eau}}{\partial \mu_2^{bois}}$ sur l'équation de la variance :

$$\begin{aligned} VAR(t^{eau}) &= \left(\frac{\mu_2^{bois}}{\Delta} \right)^2 \{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_1^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_1^{bois}) \} + \\ &\quad \left(\frac{\mu_1^{bois}}{\Delta} \right)^2 \{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_2^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_2^{bois}) \} \end{aligned}$$

Similairement pour t^{bois} :

$$\begin{aligned} VAR(t^{bois}) &= \left(\frac{\mu_2^{eau}}{\Delta} \right)^2 \{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_1^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_1^{bois}) \} + \\ &\quad \left(\frac{\mu_1^{eau}}{\Delta} \right)^2 \{ (t^{eau})^2 VAR(\mu_2^{eau}) + (t^{bois})^2 VAR(\mu_2^{bois}) \} \end{aligned}$$

Chapitre V

Détermination de l'angle des microfibrilles du bois par diffraction de rayons X

Introduction

Nous avons décrit la paroi cellulaire comme une structure complexe où les composants les plus importants correspondent aux microfibrilles qui sont des arrangements celluloseux disposés en spirale. Il est clair que la simple « vision agrandie » des parois cellulaires peut donner une valeur directe de l'AMF, cependant, la validité de cette mesure est soumise à discussion. Par exemple, Evans (1997) signale : « Il est nécessaire de se débarrasser de l'idée que l'AMF mesuré par microscopie, et défini comme l'orientation des microfibrilles plus probable dans la couche S2, correspond à la valeur correcte par lequel toutes les autres méthodes expérimentales doivent être jugées ».

La validité des méthodes visuelles est contrainte principalement par sa représentativité. Ainsi, la disposition des microfibrilles périphériques à la paroi cellulaire ne présume pas de la disposition de microfibrilles internes. En revanche, des méthodes par diffraction de rayons X sont plus représentatives car le signal de diffraction est intégré sur toute l'épaisseur de la paroi cellulaire, et cela dans plusieurs milliers voire plusieurs dizaines de milliers de cellules.

Malheureusement la disposition en spirale de microfibrilles dans la paroi cellulaire entraîne la génération des profils de diffraction expérimentaux avec une interprétation très complexe. Or, des modèles simplificateurs réalisent des suppositions sur les formes géométriques du matériau. En revanche, nous envisageons une nouvelle démarche qui consiste à réduire au maximum les suppositions sur la géométrie du matériau en réalisant des mesures réelles sur l'orientation des parois cellulaires. Cela est possible au moyen d'imagerie microscopique et par l'utilisation d'un modèle rigoureux de simulation des profils de diffraction.

Dans la première partie de ce chapitre nous présentons un modèle de simulation des profils de diffraction en utilisant un « modèle de base » de la forme des cellules. Puis, nous approfondissons ce modèle au moyen de l'étude de la variabilité des paramètres par une approche stochastique. Nous confrontons nos profils théoriques avec ceux de la littérature.

Dans la troisième partie du chapitre, nous décrivons le dispositif et la démarche expérimentale pour l'obtention des profils de diffraction du plan cristallin (002) du bois.

Au niveau des résultats, nous présentons des profils de diffraction expérimentaux que nous confrontons avec les profils de diffraction théoriques. Cette confrontation nous permet de tirer des conclusions sur l'applicabilité de notre démarche.

1. Détermination de l'AMF par l'approche classique de diffraction.

1.1 L'influence de la forme de la section transversale des cellules

Dans l'équation de Cave (équation II.1) nous pouvons noter que le résultat ϕ du point de diffraction autour du cercle 2θ est fonction non seulement de l'AMF, mais aussi de l'angle α ; c'est-à-dire de l'inclinaison de la surface de la paroi cellulaire par rapport au faisceau incident. Or, la paroi cellulaire présente un ensemble de valeurs α différentes, en fonction de la forme de la section transversale des cellules. Par exemple, en supposant des cellules parfaitement verticales et avec section transversale rectangulaire, chacune des 4 faces de la paroi cellulaire présente des angles différents par rapport à un faisceau incident horizontal (Fig. 1).

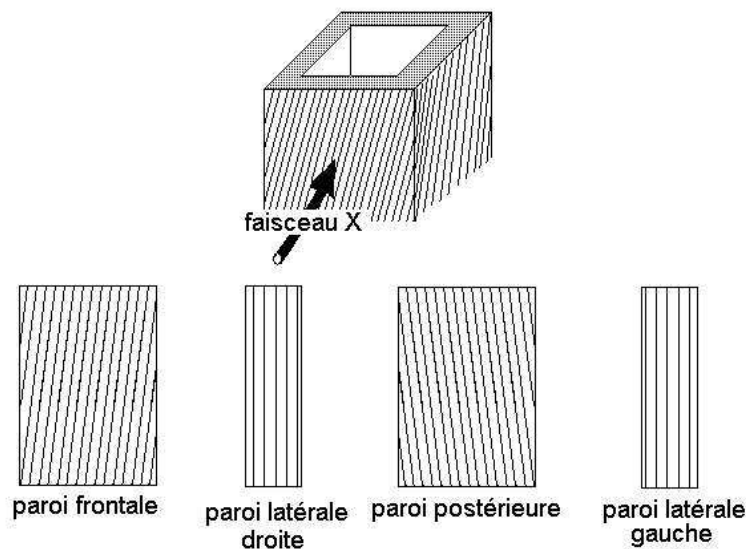


Figure 1. Les 4 côtés de la paroi cellulaire (S2) d'une cellule rectangulaire « vus » par le faisceau X.

Les approches courantes pour l'estimation de l'AMF consistent à établir un modèle de base pour la forme de la section transversale des cellules. Par exemple, Verrill *et al.* (2001) ont mis à disposition sur le web, un logiciel capable d'estimer l'AMF à partir d'un profil de diffraction expérimental⁶. Ils supposent des cellules à section transversale carrée. Leur estimation de l'AMF consiste en une relation empirique selon laquelle l'AMF mesure 96% de

⁶ Logiciel de libre utilisation disponible sur Internet sous la forme d'un Applet en www1.fpl.fs.fed.us/mfa.html.

S (section 4.3.3 au chapitre II). Ils obtiennent la valeur de l'écart type des pics (S) en utilisant une technique de minimisation par moindres carrés des données expérimentales.

Une approche permettant de s'affranchir du problème provoqué par les différentes orientations de la paroi cellulaire, consiste à réaliser des mesures de l'AMF pour chaque segment de paroi cellulaire avec un micro-faisceau (Fig. 2). En effet, la technique consiste à mesurer l'AMF dans un échantillon de l'ordre de $10 \mu m$ d'épaisseur obtenu à l'aide d'un microtome (cette épaisseur représente, par exemple pour l'Épicéa, la moitié du diamètre de ses trachéides). Des expériences de ce type ont été menées en utilisant un faisceau collimaté à $2 \mu m$, issu de l'accélérateur de particules ESRF (*European Synchrotron Radiation Facility*) à Grenoble (Lichtenegger *et al.*, 1999 ; Hori *et al.*, 2002 ; Lichtenegger *et al.*, 2003).

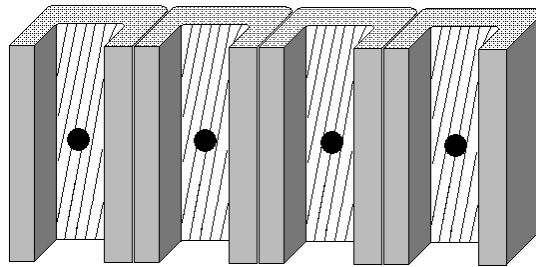


Figure 2. Groupe de trachéides microtomés à $10 \mu m$ balayés avec un micro-faisceau X de $2 \mu m$ de diamètre.
(D'après Lichtenegger *et al.*, 2003).

Pour des raisons de simplicité, la section transversale des fibres ou trachéides est presque toujours supposée carrée ou circulaire. Cependant, l'observation microscopique démontre que le bois présente une hétérogénéité qui peut exiger un traitement de la forme des cellules plus rigoureux.

Pour démontrer l'influence de la forme des cellules nous avons créé une application numérique capable d'établir l'allure du profil cristallin (002), en utilisant la solution de l'équation de Cave (annexe II.3). Le logiciel prend en compte : (a) différents angles α et (b) des formes « idéales » dans la section transversale des cellules.

La section transversale des cellules a été modélisée comme un parallélogramme régulier avec N côtés. Ainsi, N prend une valeur entière qui représente l'ensemble de segments de longueur et d'épaisseur égale, qui forment la paroi cellulaire (Fig. 2). Pour $N = 1$ nous obtenons un seul

segment de paroi cellulaire. Pour $N = 2$ nous obtenons deux segments orientés de façon opposée. Si $N = 4$, la section transversale carrée est conformée. Si $N = 6$ la cellule est hexagonale. Au fur et à mesure que N augmente la section transversale des cellules s'approche d'un cercle.

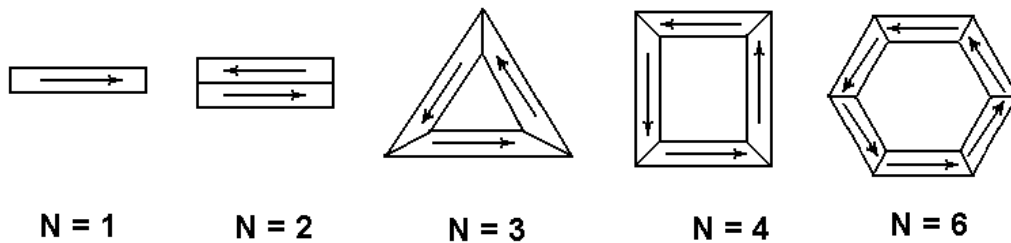


Figure 2. Modèles des formes « idéales » dans la section transversale des cellules.

Les valeurs de α sont calculées comme suit :

$$\alpha_i = \frac{360^\circ}{N} \times i \quad i = 0, \dots, N-1$$

Pour chaque segment de paroi, nous calculons l'angle azimutal $\bar{\phi}$ où se place le point de diffraction. En suivant la pratique courante décrite dans la littérature, nous avons dispersé ce pic avec une valeur d'écart type égale à S ou « *broadening factor* » (Verrill *et al.*, 2001). La forme de la courbe f_i est déterminée par une gaussienne selon :

$$f_i = e^{-1,0 \left(\frac{(\phi_i - \bar{\phi})^2}{2S^2} \right)} \quad [\text{V.1}]$$

Le profil de diffraction théorique est obtenu à partir de la somme des courbes gaussiennes pour tous les segments de paroi cellulaire (N).

REMARQUE : Dans la littérature, un écart type S constant est utilisé pour disperser tous les pics. Bien que cette approche ait été utilisée couramment, par exemple par Evans (1997) et Verrill *et al.* (2001), nous considérons qu'il n'est pas rigoureux, comme nous allons le démontrer dans la section 2.

1.2 Changement de la forme des cellules

La figure 3 présente l'allure du pic de diffraction pour différentes formes de section transversale calculée avec un AMF égal à 30° et α égal à 0° .

Il est possible d'observer un changement drastique de l'allure du profil de diffraction. Parallèlement, il semble que le modèle de cellule octogonale représente bien des cellules à section ronde.

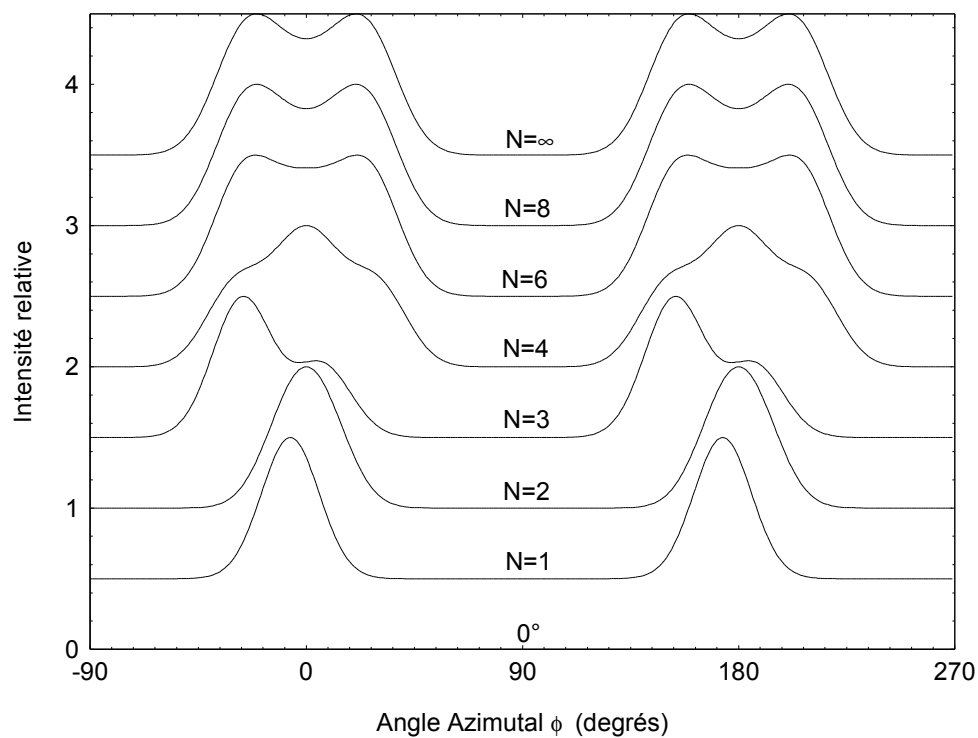


Figure 3. Profil de diffraction (002) en fonction des différentes sections transversales des cellules
(Pour des raisons de clarté les profils sont décalés verticalement de 0,5).

1.3 Changement de l'angle de rotation des cellules

La figure 4 présente le profil de diffraction (002) avec un AMF égal à 30° pour des cellules à section transversale carrée avec différents angles α de rotation des cellules.

Pour $\alpha = 0^\circ$ (le faisceau incident étant normal à la paroi frontale de la cellule), le profil résultant est symétrique. Pour une déviation croissante ($\alpha = 11,25^\circ$ ou $\alpha = 22,5^\circ$) le profil perd sa symétrie, laquelle est récupérée de nouveau à 45° mais où la courbe présente une double crête. A partir de 45° les mêmes distorsions sont mises en évidence mais dans le sens opposé.

Il faut noter que pour cellules à section transversale circulaire, leur orientation par rapport au faisceau perd toute influence sur l'allure du profil de diffraction.

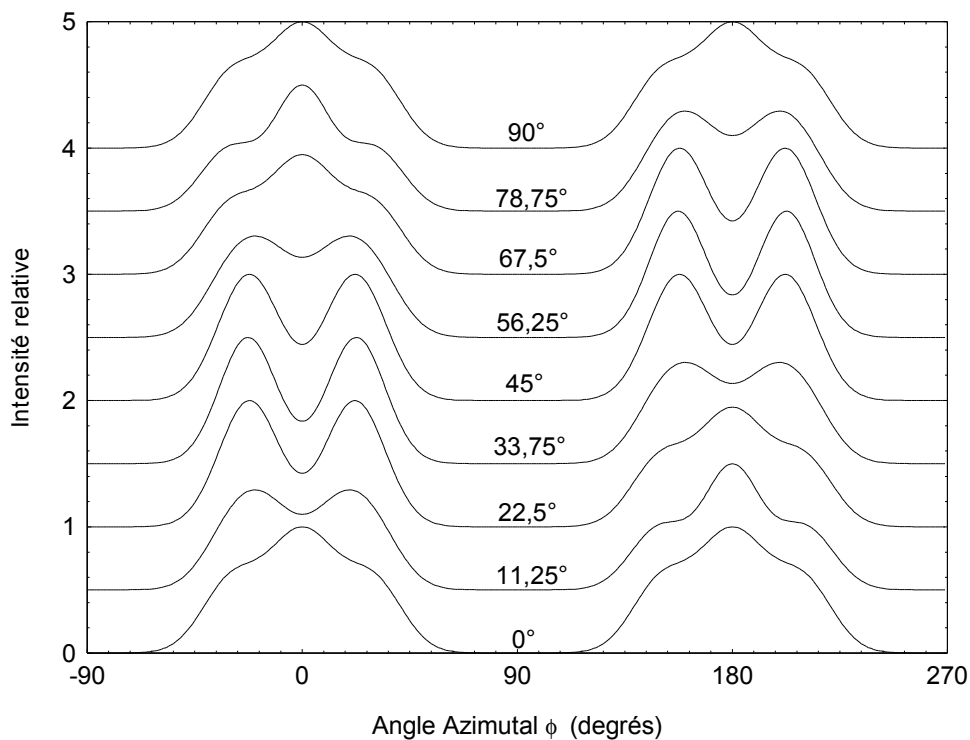


Figure 4. Profil de diffraction (002) à un AMF égal à 30° pour des cellules à section carrée en fonction des différents angles de rotation α . (Pour propos de clarté les profils sont décalés verticalement de 0,5).

1.4 Changement de l'AMF

La figure 5 présente les profils de diffraction pour différentes valeurs de l'AMF (calculés avec $\alpha = 0^\circ$ et $S = 10^\circ$). Nous observons qu'au fur et à mesure que l'AMF augmente, la largeur des pics augmente. Cependant la forme des sommets change pour passer d'une seule crête à 3 crêtes lorsque μ dépasse de 30° .

D'autre part, le pic pour un AMF égal à 10° présente une largeur à peu près similaire qu'un obtenu pour 0° . En d'autres mots, la pratique d'étaler les pics avec un écart type constant semble montrer ses limites.

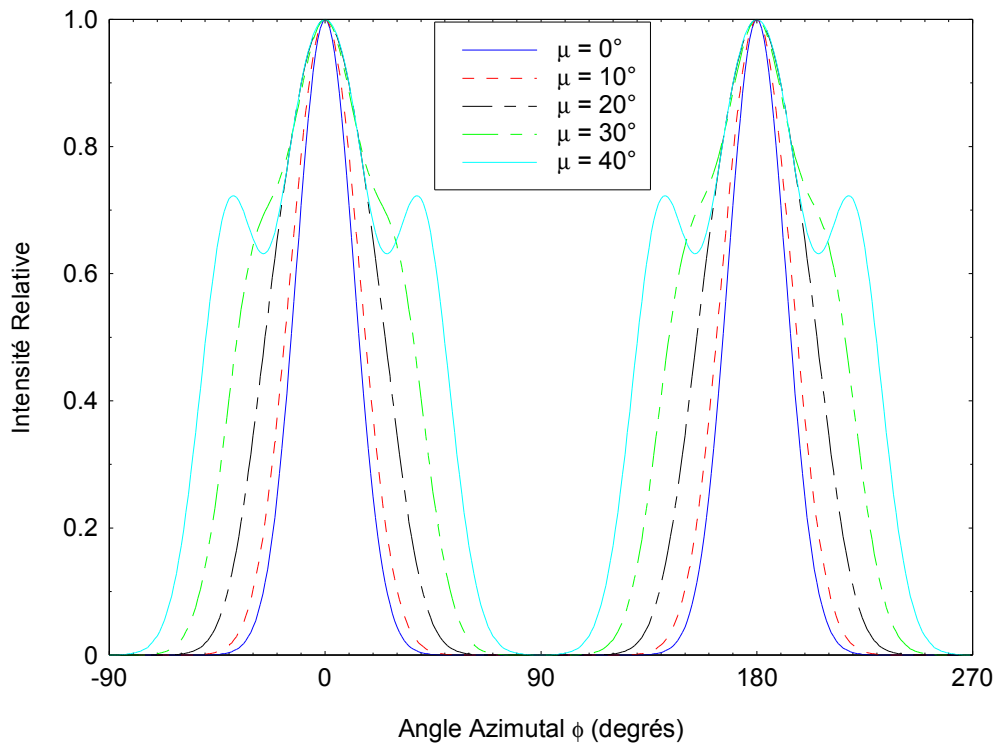


Figure 5. Profil de diffraction (002) en fonction des différents angles de microfibrille pour une section transversale carrée et un angle de rotation $\alpha = 0^\circ$

2. La variance de l'AMF

2.1 Effet de la variance de l'AMF sur la variance du point de diffraction

L'utilisation d'un écart type autour de ϕ comme moyen pour étaler les profils de diffraction constitue une approche très répandue à cause de sa simplicité, néanmoins elle n'est pas exacte. Etant rigoureux, un écart type σ dans l'AMF se propage dans le profil de diffraction comme un écart type S autour du point de diffraction ϕ . La relation entre σ et S n'est pas une constante mais est une fonction qui dépend des conditions géométriques de mesure (Fig. 6).

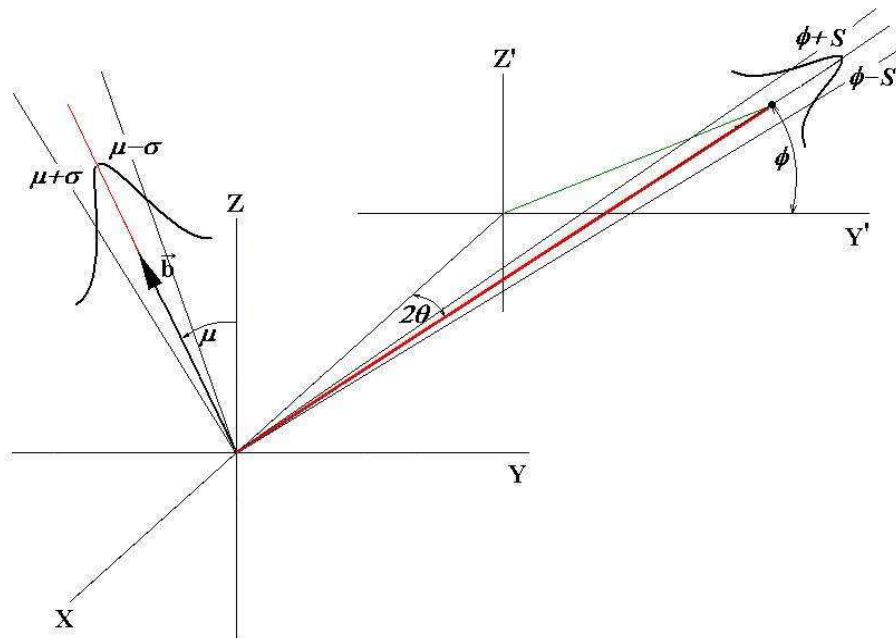


Figure 6. La projection de l'écart type (σ) autour l'AMF donne l'écart type S autour du point de diffraction ϕ . (Figure complémentaire de la figure II.21).

Si nous supposons que la variation de l'AMF présente une distribution gaussienne, alors la valeur de S peut être calculée simplement à partir de σ en utilisant la méthode Monte-Carlo. A cet effet nous calculons quelques milliers de valeurs de μ par tirage de nombres aléatoires distribués selon la courbe de Gauss. Ensuite pour chaque μ nous calculons les deux valeurs de ϕ données par la solution à l'équation de Cave. Finalement nous calculons S selon l'écart type de ϕ .

2.2 Changement des profils de diffraction

L'implémentation de la méthode Monte-Carlo démontre que pour une valeur de ϕ proche de 0° et 180° , la valeur de S devient petite et vice-versa, les profils de diffraction doivent avoir des allures sensiblement différentes de celles obtenues précédemment. En effet, dans la figure 7a nous avons dessiné des profils de diffraction théoriques (cellules carrés et $\alpha = 22,5^\circ$) en utilisant une valeur de S constante et égale à 12° tandis que dans la figure 7b nous avons dessiné les profils de diffraction théoriques pour une valeur de σ constante et égal à 12° . Nous pouvons observer que la moitié droite du profil de diffraction change fortement son allure.

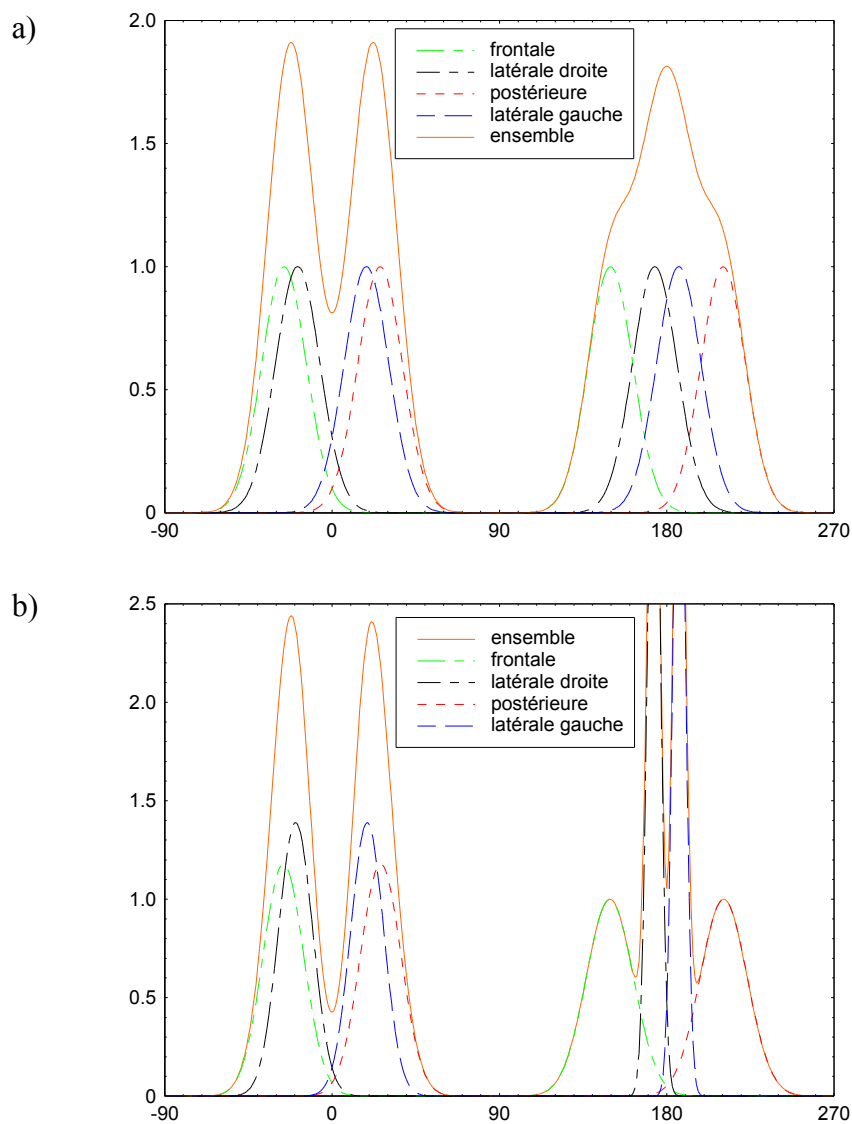


Figure 7. Profils théoriques pour chaque segment et pour l'ensemble de segments d'une cellule carré.

(a) gaussien ($\phi, \sigma=12^\circ$) (b) gaussien ($\mu, \sigma=12^\circ$). ($\mu=30^\circ$ et $\alpha=22,5^\circ$).

Comme conséquence de l'utilisation de notre méthode de calcul, les profils de diffraction présentent un ou plusieurs pics centraux très pointus. L'obtention des pics est la conséquence de la normalisation de l'aire de la cloche de Gauss pour le poids relatif de chaque segment de paroi. Ainsi, lorsque ϕ est proche de 0° ou 180° , l'écart type S devient petit et la hauteur de la cloche est élevée afin de maintenir son échelle relative. Dans la littérature, l'apparition de ces pics a été décrit par Cave (1997b) en utilisant une approche théorique. Cependant, nous n'avons pas trouvé de références expérimentales à ce sujet.

2.3 Adoucissement du profil de diffraction

La diffraction générée par le bois n'est pas parfaite. Par exemple, dans un profil 2-D, la diffraction provenant du plan cristallin (002) présente une largeur importante autour d'un angle 2θ théorique (Fig. 8). D'autre part, la largeur azimutale de l'élément sensible du capteur (résolution spatiale de la mesure) va avoir tendance à adoucir le profil de diffraction.

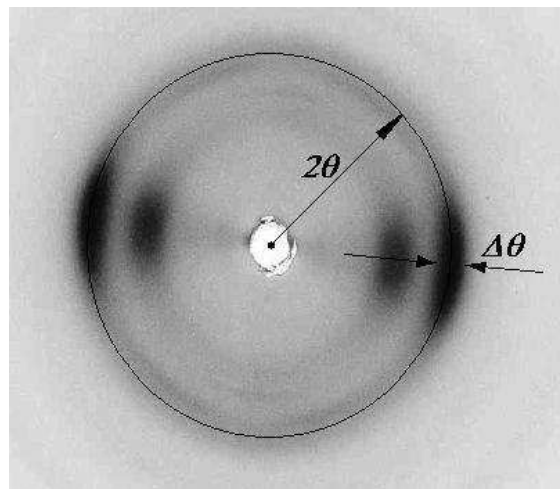


Figure 8. Variation dans l'angle de diffraction par rapport au cône d'angle 2θ .

De la même façon que pour la variabilité de l'AMF, nous avons inclus une variance de θ dans la méthode Monte-Carlo qui réalise le calcul de l'écart type de ϕ . Il faut nous rappeler que la diffraction du plan (002) pour l'énergie Mo $K\alpha$ s'obtient à un angle θ de $5,21^\circ$; ainsi, nous avons utilisé arbitrairement une distribution gaussienne avec un écart type de $0,5^\circ$ et moyenne égal à $5,21^\circ$. L'adoucissement généré par le capteur est pris en compte en réalisant une moyenne mobile du profil final. Les résultats de ces deux traitements réalisés pour des cellules à section ronde sont présentés dans la figure 9.

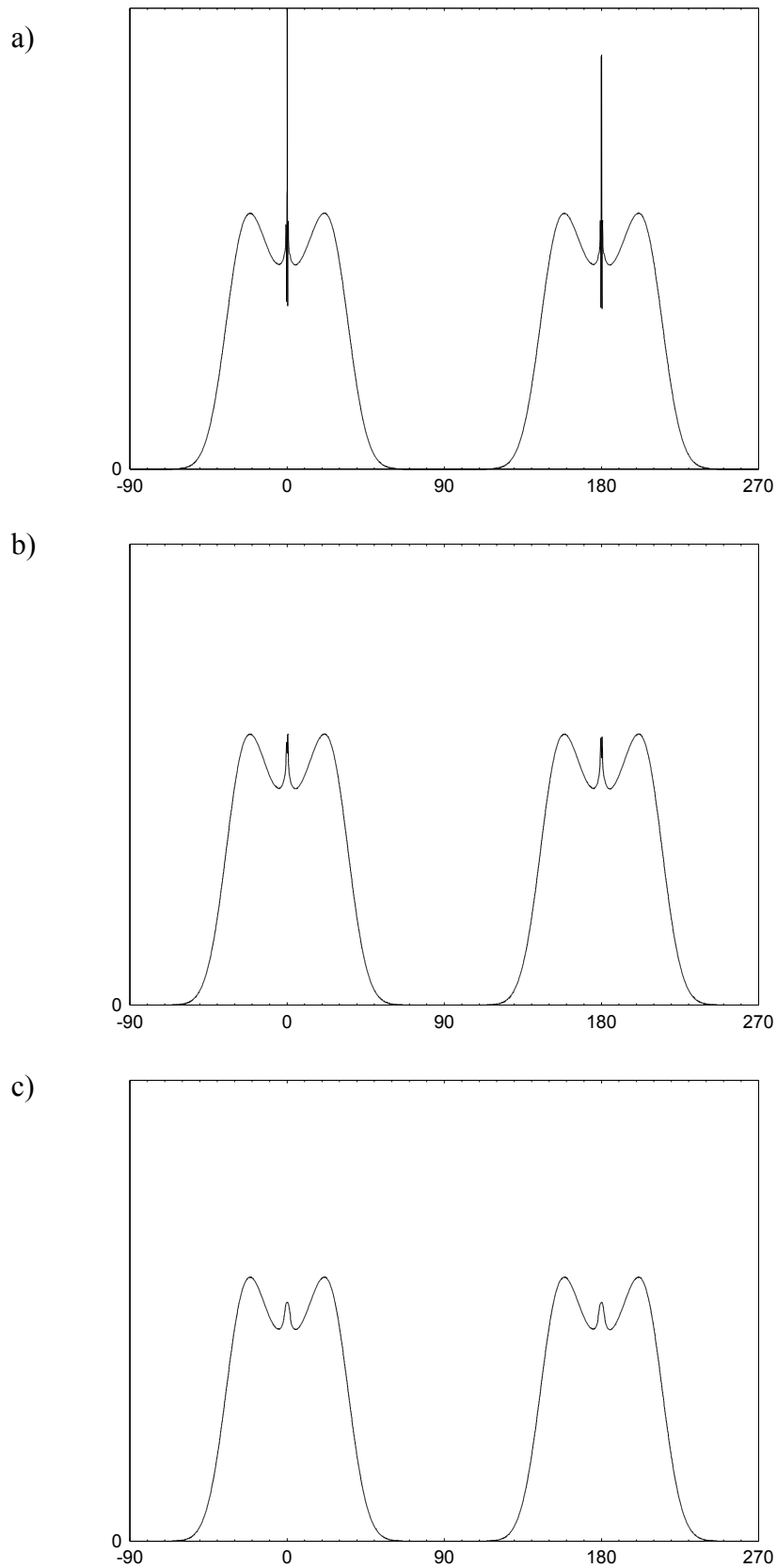


Figure 9. (a) Profil de diffraction calculé sans variation sur θ , (b) Profil de diffraction calculé avec un écart type de θ égal à $0,5^\circ$, (c) adoucissement par moyenne mobile avec une fenêtre de taille égal à 3° . ($\mu=30^\circ$ et $\sigma = 10^\circ$).

3. Démarche expérimentale

3.1 Description de notre approche pour l'estimation de l'AMF.

Notre approche consiste à réaliser des mesures expérimentales de la forme transversale de l'ensemble des cellules qui contribuent à la diffraction. Ainsi, la démarche considère l'obtention d'une image par microscope électronique de la zone réelle où le faisceau X traverse l'échantillon (Fig. 10).

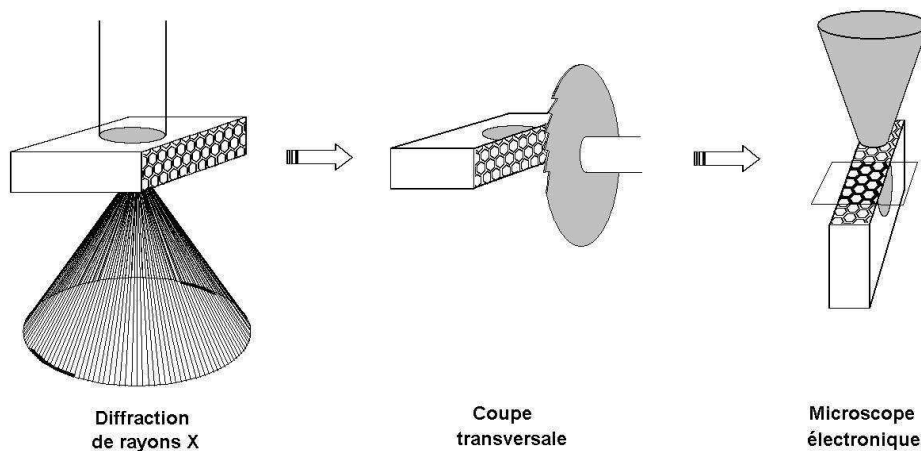


Figure 10. Démarche expérimentale simplifiée pour l'obtention de la forme transversale des cellules.

Nous réalisons un seuillage de l'image numérique (Fig. 11a) pour obtenir l'image binaire des parois cellulaires. Ensuite nous réalisons une détection automatique de contours au moyen du logiciel *MeshPore* développé au LERMaB (Perré, 2004) (Fig. 11b). Cette application permet de générer automatiquement des chaînes qui sont reconnaissables par le logiciel *Easymesh* pour construire le maillage (Fig. 11c). Par ailleurs, le logiciel *Meshpore* calcule l'orientation de la paroi cellulaire pour chaque élément triangulaire du maillage (Fig. 11d) et génère un fichier avec ces informations.

A partir de ce fichier, une petite application se charge de calculer la surface de chaque élément et de construire un histogramme des orientations de la paroi cellulaire (Fig. 12). Cet histogramme est utilisé comme entrée dans le programme de simulation de profils de diffraction décrit précédemment.

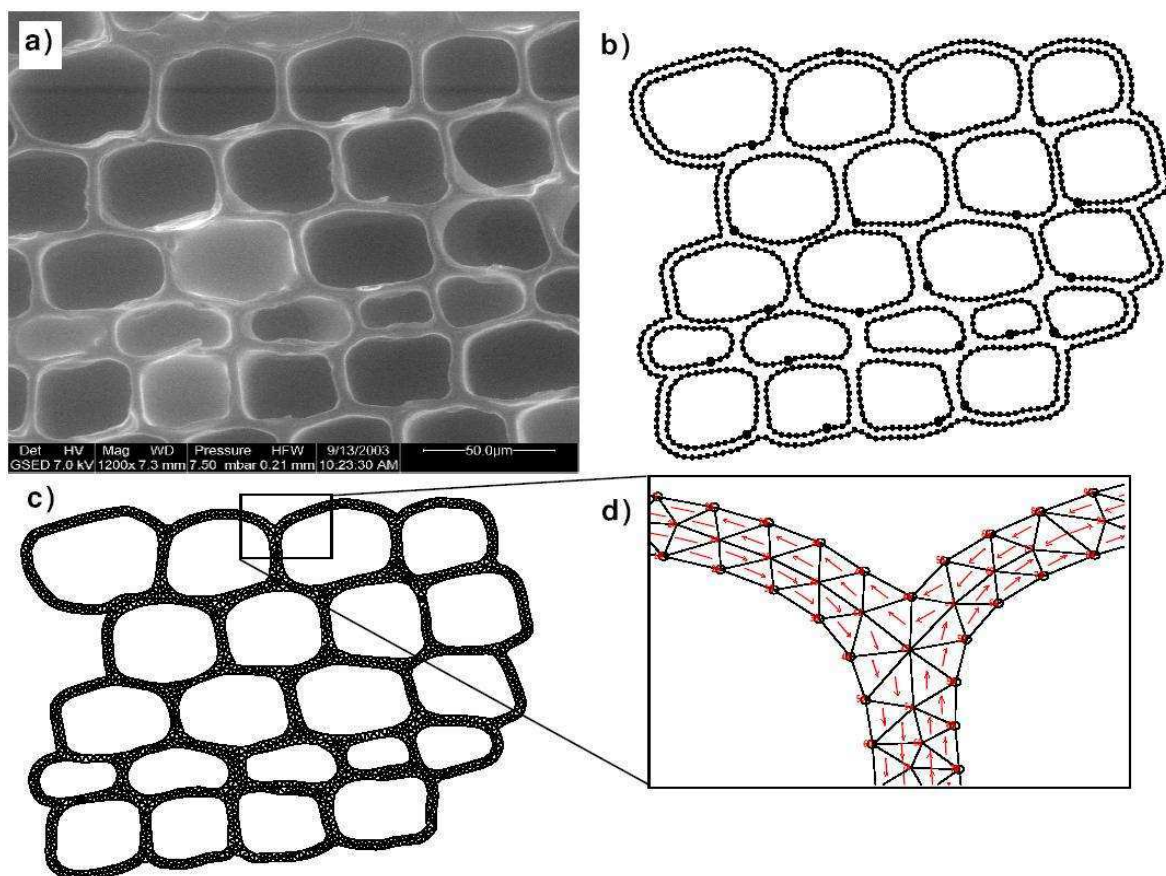


Figure 11. (a) Image initiale, (b) génération de contours en utilisant MeshPore, (c) maillage de la paroi cellulaire réalisé par EasyMesh et (d) orientation de la paroi pour chaque élément estimé par MeshPore.

(D'après Perré, 2004)

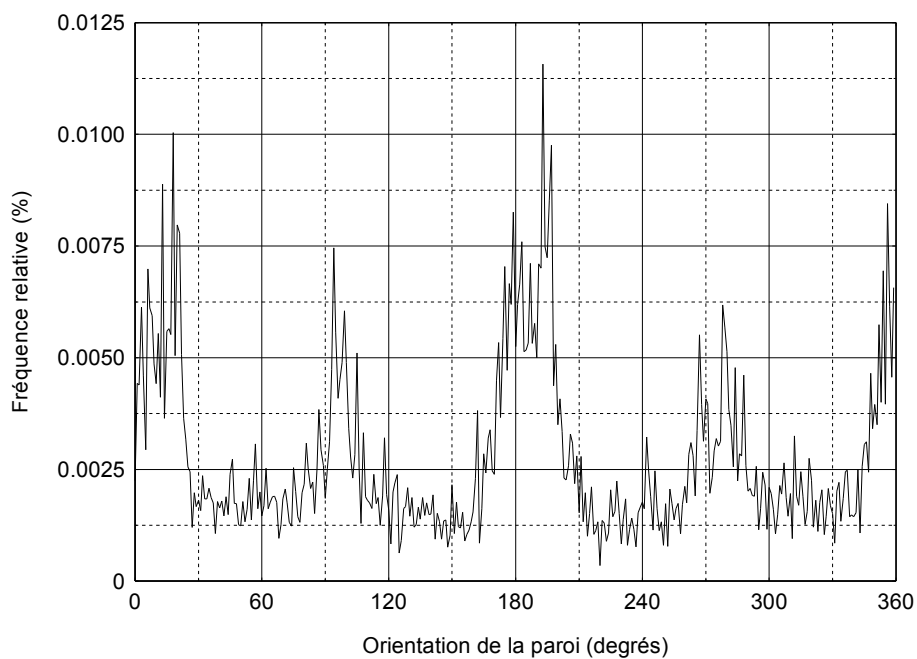


Figure 12. Histogramme de l'orientation de la paroi cellulaire calculé à partir de la figure 11d.

3.2 Description du matériel expérimental

Nous avons utilisé une source X de cristallographie marque *INEL* modèle XRG3000 équipée d'un tube avec anticathode en Molybdène. Nous avons utilisé la diode en tellure de cadmium (CdTe) et l'analyseur MCA8000A décrits dans les chapitres précédents. Le capteur a été placé à un angle égal à $10,5^\circ$. Or, compte tenu du fait que nous disposons d'un capteur ponctuel, pour mesurer l'ensemble du cône de diffraction il est impératif de faire tourner l'échantillon dans un axe coïncidant avec le faisceau incident (Fig13a). A cet effet, nous avons utilisé un moteur à courant continu avec commande numérique (modèle EM31CC de *Newport-Microcontrôle*). Le codeur optique de cet appareil compte 2000 impulsions par tour. Nous avons conçu un dispositif porte-échantillon entraîné par 2 poulies crantées avec une relation 6:1, donc, nous obtenons un total de 12000 pas de codeur par tour ou $0,03^\circ$ par pas (Fig. 13b). Plusieurs photographies détaillant ce montage expérimental sont présentées dans l'annexe 2 du prochain chapitre.

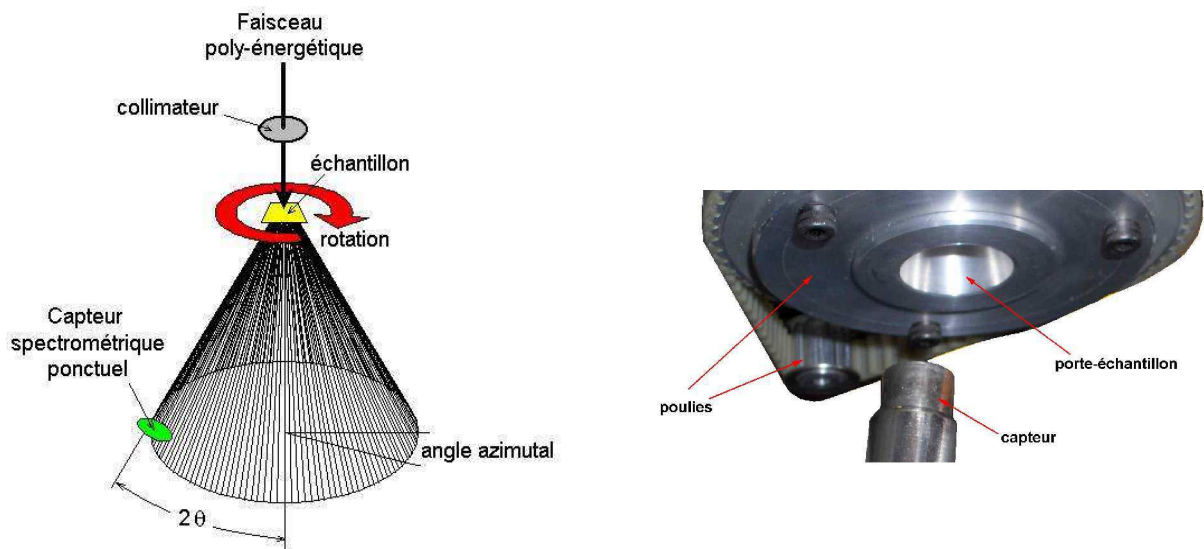


Figure 13. (a) Schéma du système d'entraînement de l'échantillon et (b) photographie de la zone à la sortie du faisceau diffracté.

3.3 Conditions de mesure

3.3.1 Description des échantillons

Nous avons choisi d'utiliser des échantillons de bois résineux car ce type de bois présente une structure anatomique beaucoup plus simple que le bois des feuillus. En effet, le bois de résineux est constitué principalement de deux types de cellules : les trachéides et les cellules de parenchyme des rayons ligneux, avec une forte proportion pour les premières. Afin d'obtenir une ampleur des propriétés inter-échantillon tout en assurant une homogénéité intra-échantillon nous avons utilisé des zones spécifiques dans les accroissements annuels :

- Zone de bois initial : caractérisé principalement par des parois cellulaires fines, des lumens gros et des trachéides à section transversale avec une forme relativement hexagonale.
- Zone de bois final : caractérisé principalement par des parois cellulaires épaisses, des lumens fins et des trachéides à section transversale avec une forme relativement rectangulaire.
- Zone de bois de compression : il s'agit d'un bois « anormal » avec des caractéristiques particulières telles que : parois cellulaires très épaisses, trachéides aux sections transversales presque complètement rondes et un AMF très élevé, pouvant atteindre 45° (Keller, 1994).

Expérimentalement le bois de compression a été obtenu à partir de la zone à plus forte croissance d'un tronc d'Epicéa à moelle fortement excentré. Les échantillons de bois initial et de bois final ont été obtenus à partir d'une planche sèche de Douglas. Tous les échantillons ont été sciés à une épaisseur nominale de 5 mm au moyen d'une micro-tronçonneuse de précision à scies jumelées, décrite par Badel (1999). La teneur en eau des échantillons pendant tout l'essai a été d'environ 8 %.

Il faut noter que l'utilisation de bois initial et bois final semble intéressante non seulement par la forme différente de ses cellules mais aussi parce que ces deux zones peuvent montrer des différences au niveau de l'AMF. En effet, Evans *et al.*, (1999) a montré des valeurs de l'AMF passant systématiquement de 18° à 10° entre le bois initial et le bois final dans les mêmes accroissements annuels dans des échantillons de *Eucalyptus nitens* et Herman *et al.* (1999) ont trouvé des variations encore plus importantes dans les cernes annuels d'Épicéa.

3.3.2 Intensité du faisceau et collimation

L'alimentation du générateur a été fixée à 25 kV avec une intensité de 12 mA. Nous n'avons pas pu utiliser une différence de potentiel plus élevée car le générateur a présenté des défaillances de fonctionnement avec des tensions plus élevées.

Le faisceau incident est réduit par un collimateur placé sur l'échantillon consistant en un disque en tungstène de 2 mm d'épaisseur perforé à un diamètre de 1 mm. Dans le but d'atteindre une résolution angulaire la plus haute possible, nous avons commencé les mesures en plaçant un collimateur avec un diamètre de trou de $400 \mu m$ directement sur la fenêtre en Béryllium du capteur. Ainsi l'angle azimutal recouvert par la surface utile du capteur a atteint $2,4^\circ$ environ (Fig. 14). Néanmoins pour augmenter le taux de comptage, nous avons finalement utilisé un collimateur de 2 mm de diamètre passant ainsi à un angle de recouvrement de 12° environ.

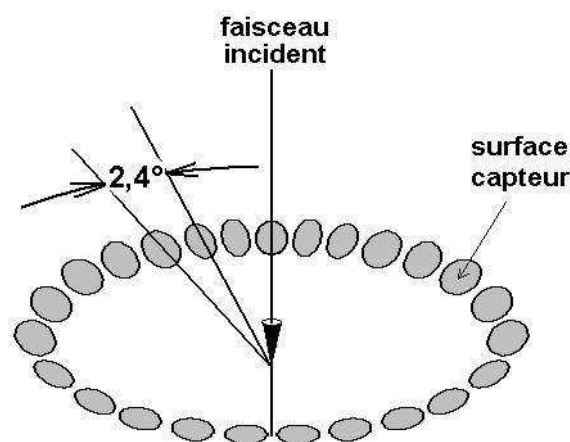


Figure 14. Schéma de la résolution angulaire de l'acquisition en fonction de la taille du collimateur.

3.3.3 Déroulement de l'acquisition

Bien que le faisceau X présente un spectre poly-énergétique jusqu'à 25 keV, une proportion considérable de l'intensité diffusée se concentre dans la raie Mo K α mais aussi dans la raie Mo K β . Nous n'avons pas filtré le faisceau incident pour réduire la raie Mo K β car nous n'avons pas disposé d'un matériau convenable (Niobium, annexe II.1). Pour les traitements de données, nous n'avons comptabilisé que les photons autour la raie Mo K α , c'est-à-dire, expérimentalement les canaux 30 et 31 dans l'analyseur MCA8000A. Pour les conditions décrites, le taux de comptage pour la raie Mo K α a atteint 30 photons s⁻¹ environ.

Nous avons réalisé les acquisitions de spectre toutes les 60 secondes en faisant tourner l'échantillon de 2,4° entre chaque mesure. Dans ces conditions la durée d'acquisition a atteint au moins 150 minutes par tour (150×2,4° = 360°). Cependant, en ajoutant le retard généré par les déplacements motorisés et l'acquisition et sauvegarde de données, le système réalise un tour complet environ toutes les 3 heures.

REMARQUE : Vu le faible taux de comptage, la durée totale de chaque mesure s'est étendue sur plusieurs jours dont les résultats partiels ont été moyennés. En plus, nous avons pu calculer la variance du profil de diffraction à partir des données issues de chaque tour.

3.3.4 Microscopie électronique

Les images microscopiques ont été prises en utilisant le microscope électronique à balayage du type environnemental modèle *Quanta 200* du fabricant *FEI* du site LERMaB-ENGREF. La principale caractéristique de cet appareil consiste en sa capacité à traiter des matériaux dans leur état naturel. Or, pour éviter toute altération de la forme des cellules par retrait ou gonflement, nous avons maintenu des conditions d'humidité d'équilibre du bois proches de celles de l'essai de diffraction. Ainsi les images ont été prises à une différence de potentiel de 6 à 7 kV en utilisant un grossissement de 600x avec l'échantillon à une température proche 20°C et une pression de vapeur de 5 mbar.

La surface recouverte par une image microscopique maillée est $0,432 \times 0,373 \text{ mm}^2$; c'est-à-dire, près de 3% de la section transversal du cylindre qui génère la diffraction (à peu près de $1 \times 5 \text{ mm}^2$).

4. Résultats

4.1 Profils de diffraction expérimentaux

4.1.1 Bois de compression

La figure 15 présente l'intensité moyenne par position et la variance après 20 tours complets de l'échantillon du bois de compression.

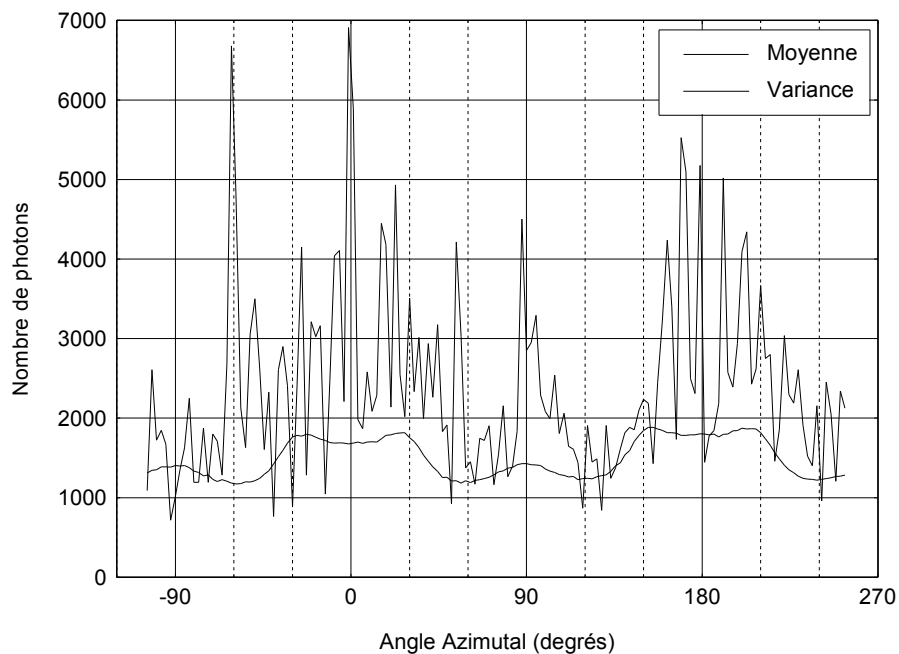


Figure 15. Moyenne et variance du profil de diffraction pour le bois de compression.

Aux alentours de 0° et de 180° nous obtenons un double pic conséquence de la diffraction des microfibrilles de la couche S2. L'allure du profil est très similaire à celle obtenue expérimentalement pour le bois de compression d'Épicéa par Andersson *et al.* (2000).

De l'observation détaillée du profil de diffraction expérimental nous pouvons en déduire plusieurs choses :

- Vers 90° et 270° nous obtenons deux pics plus faibles, qui ont été expliqués par Cave (1997b) et Andersson *et al.* (2000) comme provenant des microfibrilles de la couche S1.
- L'allure des pics à double crête est typique de cellules soit à section transversale arrondie (Fig. 3), soit à section transversale carré mais tournés de 45° (Fig. 4).
- Nous n'avons pas obtenu un petit pic central pointu comme nous l'avons prévu théoriquement dans la figure 9 ; néanmoins, la variance semble présenter un pic à 0° qui est, peut être, la mise en évidence d'un pic dans cette zone qui serait masqué par le manque de résolution spatiale.

4.1.2 Bois initial

La figure 16 présente l'intensité moyenne par position et la variance après 23 tours complets de l'échantillon du bois initial (3 jours de mesure).

Il faut noter que l'intensité du profil est beaucoup plus faible (et plus bruitée) que dans les deux autres cas, sûrement à cause de la moindre masse ligno-cellulosique traversée par le faisceau. La hauteur relative des deux pics à 0° et 180° par rapport au « bruit de fond » est plus faible aussi. Par exemple, pour le bois final les pics sont 100% plus élevés que le bruit de fond (Fig. 17), alors que pour le bois initial ils sont plus élevés seulement de 25%. Ce constat peut être expliqué par une couche S2 relativement moins importante ou par une moindre taux de cristallinité du bois initial. Néanmoins, aucune référence à ce sujet n'a été trouvée.

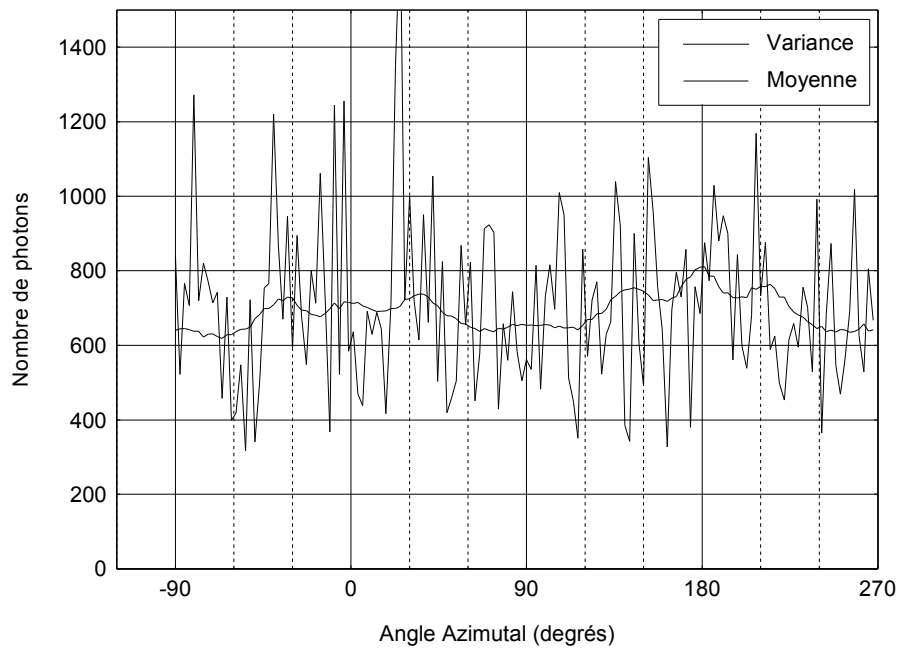


Figure 16. Moyenne et variance du profil de diffraction pour le bois initial.

De l'observation détaillée du profil de diffraction expérimental pour le bois initial nous pouvons en déduire plusieurs choses :

- La présence d'une crête central dans chaque pic révèle la présence de cellules à section relativement carré.
- Les deux pics sont un peu dissymétriques en hauteur, ce qui révèle une légère inclinaison des parois par rapport au faisceau (α non nulle mais de quelques degrés).
- Le relatif éloignement de deux crêtes latérales est expliqué par un AMF élevé.
- La hauteur relativement importante des crêtes latérales révèle la forte présence des parois en disposition frontale et postérieure.
- La netteté des 3 crêtes révèle un écart type faible, donc, nous pouvons supposer que la variance de l'AMF est faible aussi.

4.1.3 Bois final

La figure 17 présente l'intensité moyenne par position et la variance après 9 tours complets de l'échantillon du bois final.

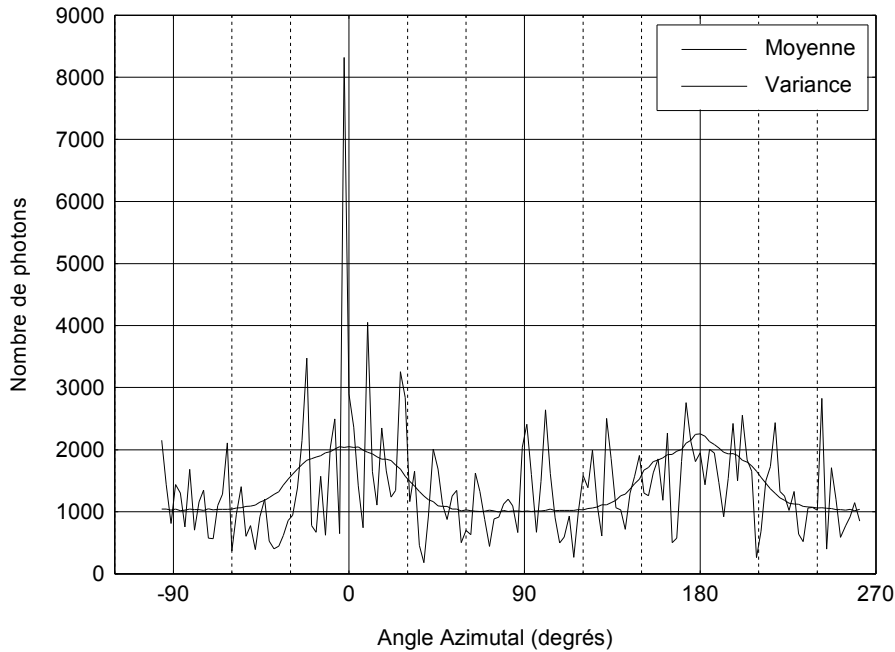


Figure 17. Moyenne et variance du profil de diffraction pour le bois final.

De l'observation détaillée du profil de diffraction expérimental nous pouvons en déduire plusieurs choses :

- La présence d'une crête central dans chaque pic révèle la présence de cellules à section relativement carré.
- Les deux pics sont très légèrement dissymétriques en hauteur, ce qui révèle une légère inclinaison des parois par rapport au faisceau (α légèrement différent de 0°).
- Le rapprochement de deux crêtes latérales est expliqué par un AMF plus réduit que pour le bois initial (la littérature signale un AMF plus fort pour le bois initial que pour le bois final).
- Bien que nous n'ayons pas obtenu de pic central dans le profil moyen, le profil de la variance présente un pic à 0° , qui est probablement l'évidence d'une perturbation dans cette zone.

4.2 Maillages et orientations des parois cellulaires

La figure 18 présente le résultat du maillage pour les 3 échantillons tandis que la figure 19 présente le diagramme d'orientation des parois.

4.2.1 Bois de compression

Le diagramme polaire de l'orientation des parois pour le bois de compression (Fig. 19a) montre une forme ellipsoïdale ; et cela, révèle des cellules à section transversale aussi ellipsoïdale. Ce constat coïncide avec l'une de deux possibilités que nous avons énoncé précédemment.

4.2.2 Bois initial

Pour le cas du bois initial, l'allure du diagramme de l'orientation des parois corrobore les constat réalisés sur la forme du profil de diffraction. En effet, le diagramme présente une allure en forme de croix avec une fréquence plus importante à 0° et 180° qu'à 90° et 270° (Fig. 19b). C'est-à-dire, des cellules relativement carrés avec une plus forte importance des parois frontales et postérieures, (à première vue, un alignement horizontal des parois peut être distingué sur l'image correspondante). Similairement, la légère inclination de la « croix », observable près de 80° et 260° ($\alpha \approx 10^\circ$) a été prédite par l'analyse du profil de diffraction.

D'autre part, des doubles crêtes faiblement dessinées à -20° et 20° et 160° et 200° sont révélatrices d'une légère tendance hexagonale dans la section des cellules.

4.2.3 Bois final

Pour le bois final nous avons obtenu un diagramme qui révèle des cellules arrondies (Fig. 19c). Cette allure est surprenante car de l'analyse de l'allure du profil de diffraction, nous aurions espéré des cellules carrées. Pour expliquer ce problème, nous pouvons penser que l'image choisie pour l'analyse n'est pas représentative de la zone étudiée. Par ailleurs, nous trouvons un pic à 270° qui casse la forme arrondie.

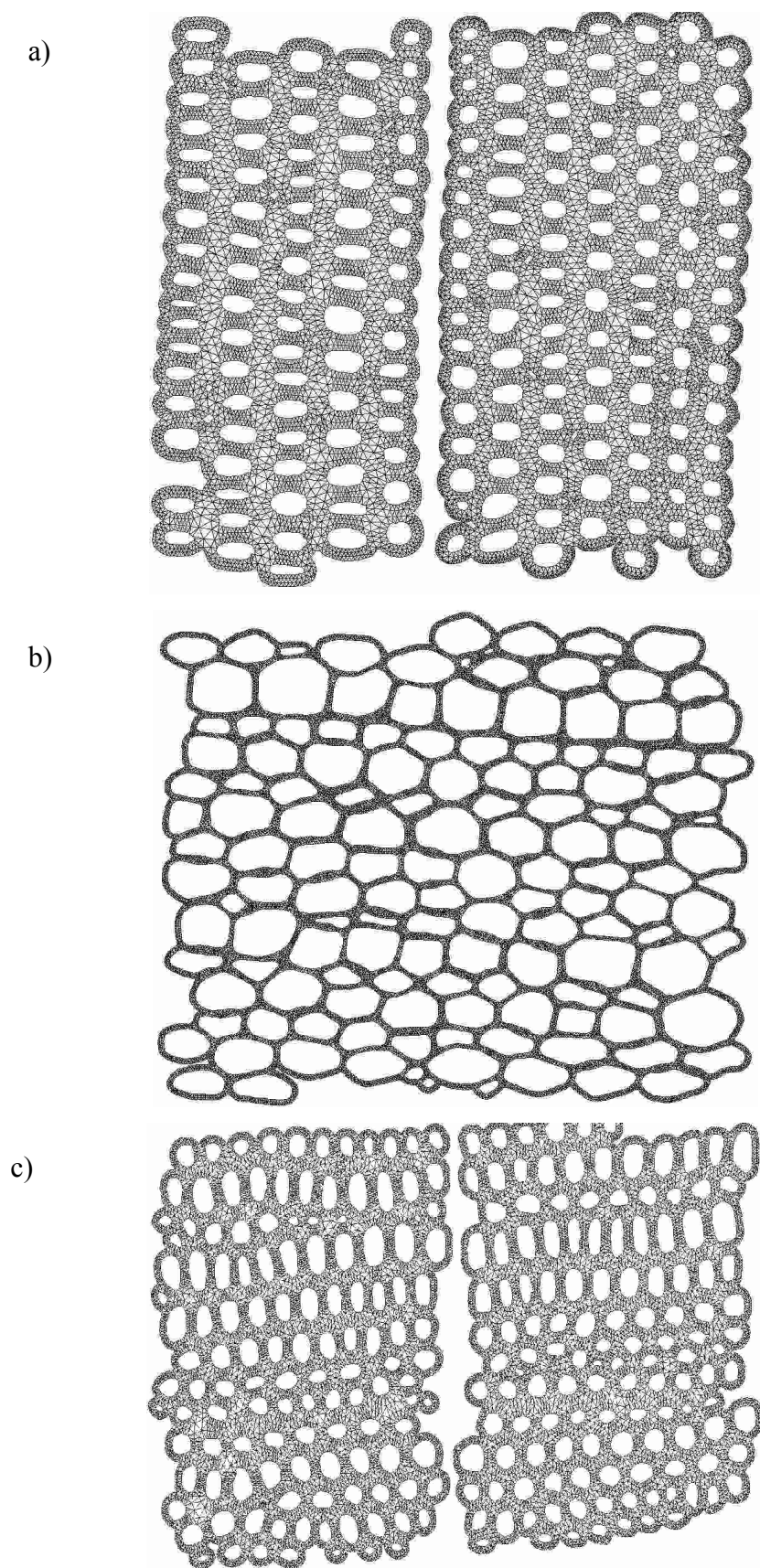


Figure 18. Maillages pour les parois cellulaires. (a) bois de compression, (b) bois initial, (c) bois final.

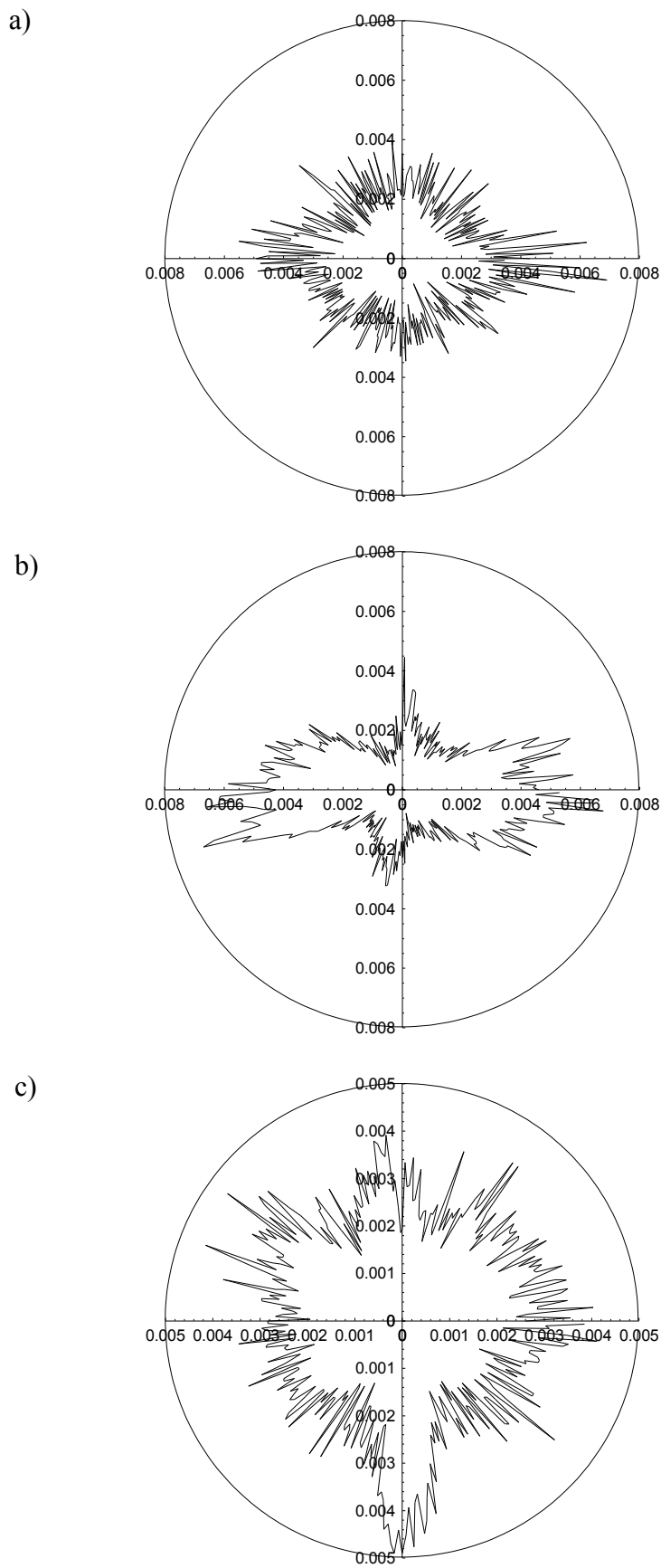


Figure 19. Diagramme polaire de l'orientation des parois. (a) bois de compression, (b) bois initial, (c) bois final.

4.3 Confrontation de résultats et calcul de l'AMF

La figure 20 présente la confrontation entre le profil expérimental et le profil théorique pour le bois de compression. Nous avons ajusté les paramètres μ et σ aux valeurs 35° et 7° respectivement pour obtenir le résultat de la figure 20.

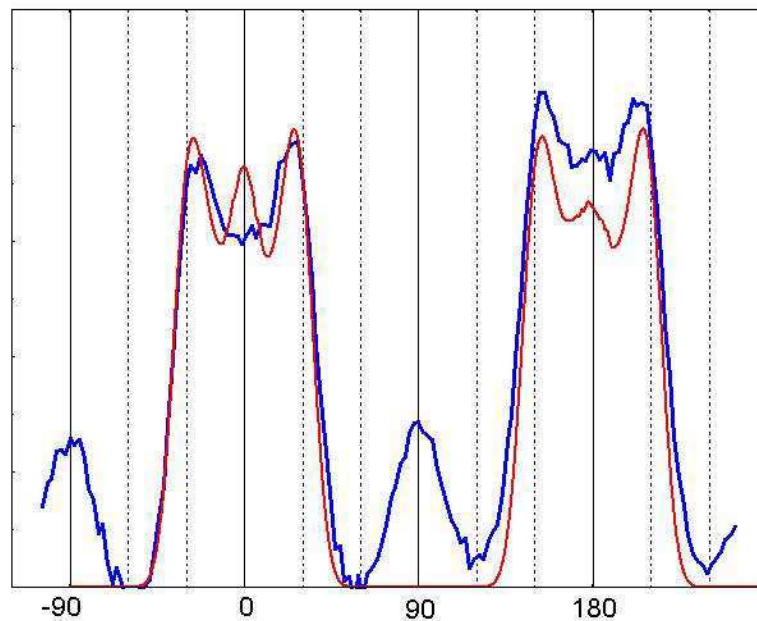


Figure20. Profil théorique (rouge) superposé au profil expérimental (bleu) pour le bois de compression.

La figure 21 présente la confrontation entre le profil expérimental et le profil théorique pour le bois initial. Nous avons utilisé un AMF de 37° avec un écart type de 4° . Le profil théorique n'atteint pas la même largeur que le profil expérimental. Or, le fait d'augmenter la valeur de sigma n'améliore pas l'allure du profil.

La figure 22 présente la confrontation entre le profil expérimental et le profil théorique pour le bois final. Ici les deux profils se confondent, nous avons utilisé un AMF de 24° avec un écart type de 12° .

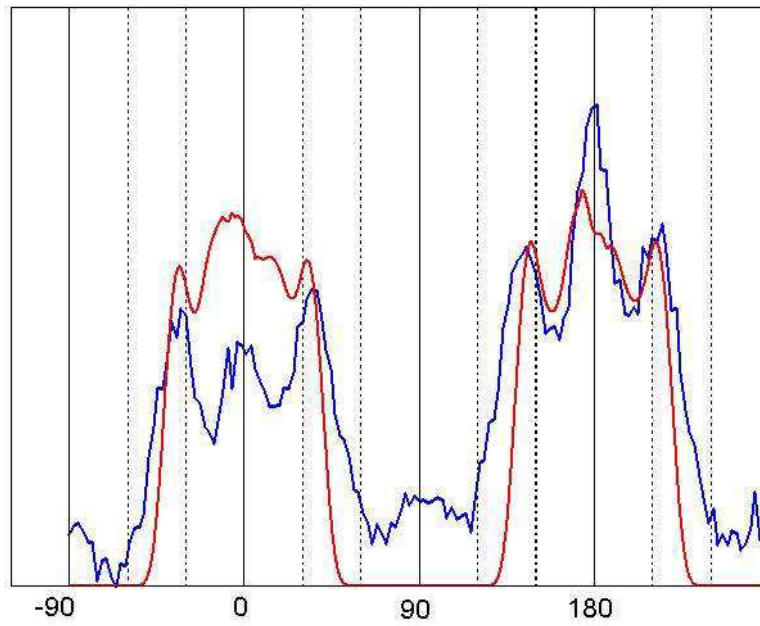


Figure21. Profil théorique (rouge) superposé au profil expérimental (bleu) pour le bois initial.

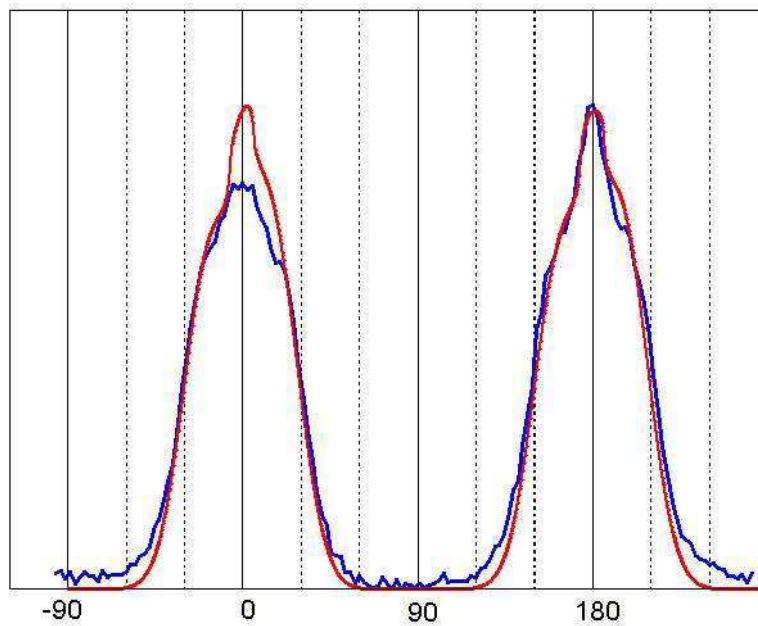


Figure22. Profil théorique (rouge) superposé au profil expérimental (bleu) pour le bois final.

5. Conclusions et perspectives

Le modèle d'estimation du profil de la diffraction (002) du bois présenté dans ce chapitre constitue une première approximation. Les résultats obtenus doivent être considérés avec précaution. Par exemple, les résultats pour l'AMF du bois initial et du bois final estimés par notre modèle semblent élevés par rapport aux données de la littérature. Au contraire, la valeur estimée pour le bois de compression (33°) est plus faible que la valeur donnée couramment pour ce type du bois (autour de 45°).

Il est évident que l'analyse d'une image recouvrant 3% du total de la surface concernée constitue un problème de représentativité. Par ailleurs, l'actuel algorithme de calcul d'orientations de paroi, propage le contour interne (lumen) vers l'intérieur et ne respecte pas la forme de la lamelle mitoyenne. Un algorithme plus complexe se révèle nécessaire pour obtenir des diagrammes plus précis.

Malheureusement le maillage de surfaces plus larges s'avère peu faisable car il est lent et délicat. Peut être seuls les contours internes des parois sont suffisants pour obtenir des résultats satisfaisants.

Malgré ces problèmes, nous considérons que le modèle se révèle prometteur pour la détermination simultanée de l'AMF et de sa variabilité.

Chapitre VI

Approche pour la détermination de la teneur en eau du bois par diffusion cohérente de rayons X

Introduction

Au deuxième chapitre nous avons vu qu'un milieu amorphe, tel que l'eau, est capable de produire de la diffusion cohérente de rayons X. Ainsi, la diffusion générée par l'eau peut être étudiée au moyen d'une expérience de dispersion angulaire⁷, c'est-à-dire, où l'intensité du rayonnement diffusé est mesuré à différents angles. De plus, une expérience de dispersion d'énergie⁸, peut être facilement réalisée avec un capteur spectrométrique puisqu'elle consiste à mesurer l'intensité spectrale du rayonnement diffusé pour un angle donné.

Or, la théorie nous indique que l'eau génère un pic d'intensité de diffusion entre 20 et 35 keV lorsque nous mesurons le spectre à un angle de $10,5^\circ$ (Fig. II.19). Parallèlement, nous avons vu qu'un angle 2θ égal à $10,5^\circ$ concentre la diffraction du plan cristallin (002) autour de 17,5 keV. En d'autres mots, l'eau contenue dans le bois pourrait générer des signaux de diffusion pouvant être discriminés des signaux liés à la structure cristalline du bois en utilisant un capteur spectrométrique positionné de la même façon que pour la détermination de l'AMF. Pour vérifier cette hypothèse nous avons réalisé des mesures préliminaires que nous décrivons dans la première partie de ce chapitre.

La deuxième partie développe un modèle théorique quantitatif pour estimer l'intensité du signal diffusé par l'eau pure, qui sert par la suite à estimer expérimentalement la teneur en eau des échantillons de bois.

La troisième partie décrit le montage expérimental que nous avons développé pour mesurer la diffusion de rayons X d'un petit échantillon de bois durant le séchage. Nous montrerons comment ce montage mesure par gravimétrie la teneur en eau de l'échantillon, pendant que l'essai de diffraction se déroule. L'évolution de la masse de l'échantillon est ensuite confrontée avec les signaux de diffusion mesurés au cours d'essai.

Dans la quatrième partie nous détaillons les données obtenues et nous analysons ces résultats expérimentaux. Finalement, nous énonçons des conclusions et des perspectives sur la mesure de la teneur en eau par diffusion de rayons X.

⁷ ADXRD : angular dispersive X-ray diffraction.

⁸ EDXRD : energy dispersive X-ray diffraction.

1. Mesures préliminaires de diffusion dans le bois humide

1.1 Description du matériel expérimental

Pour réaliser les mesures préliminaires nous avons utilisé un montage préexistant au commencement de cette thèse. Il est constitué d'un disque mis en rotation selon un axe coïncidant avec un faisceau incident, à l'aide d'un moteur pas à pas et d'un contrôleur de la marque *CharlyRobot* (Fig. 1). Un porte-échantillon supporte un collimateur en plomb de 2 mm diamètre qui tourne avec l'échantillon en bois. Un capteur spectrométrique (CdTe marque *Amptek*) a été fixé à un cadran qui permet de régler l'angle de diffusion.



Figure 1. Photographie du plateau rotatif constituant le montage expérimental préliminaire.

En utilisant ce montage, nous avons réalisé des mesures avec une résolution angulaire proche de 2° (185 spectres par tour). Le temps d'acquisition pour chaque position angulaire a été de 60 secondes. Le générateur XRG 3000 d'*INEL* a été réglé à 36 kV avec une intensité de 2 mA.

1.2 Diffusion pour des matériaux proches du bois

Dans le quatrième chapitre nous avons substitué l'échantillon de bois humide par un double échantillon de plastique et d'eau, suivant un critère de ressemblance par rapport aux coefficients d'atténuation. Néanmoins, deux matériaux avec des coefficients d'atténuation qui se ressemblent, peuvent avoir un comportement en diffusion très différent. Par exemple, dans le domaine médical, les mannequins plastiques utilisés usuellement en transmission, donnent des signatures de diffusion complètement différents à ceux des tissus humains qu'ils substituent (Tartari *et al.*, 2002 ; Poletti *et al.*, 2004).

Dans la figure 2 nous présentons quelques spectres mesurés à partir d'un rayonnement diffusé à 12° en utilisant notre montage préliminaire. Le comportement en diffusion du Kemetal s'éloigne de celle du bois. De même, le spectre de diffusion pour un échantillon de bois reconstitué du type MDF⁹ est différent du spectre du bois massif. En autres termes, pour des essais de diffusion, l'utilisation d'échantillons de bois s'impose.

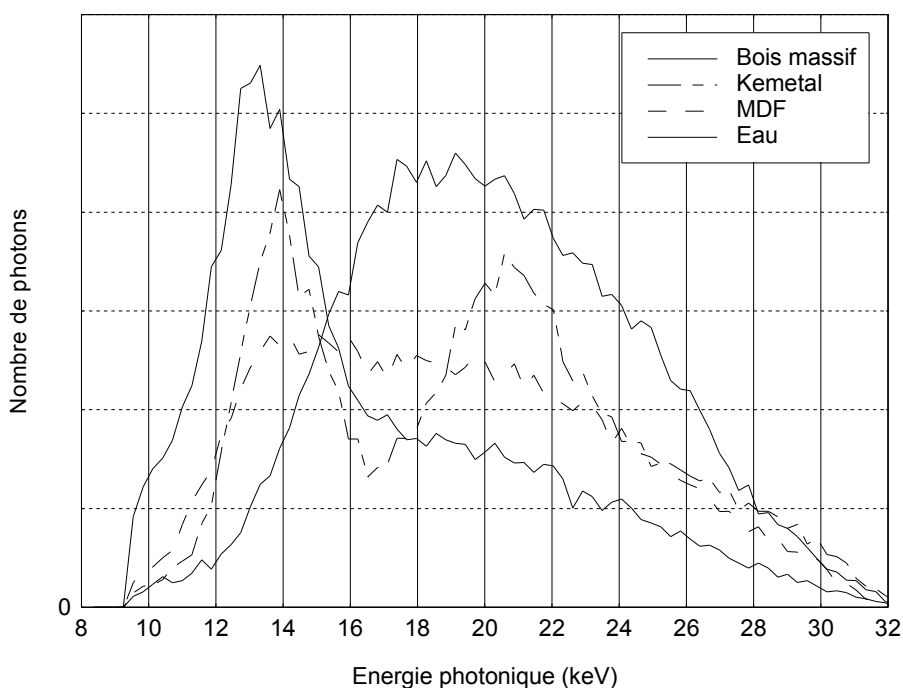


Figure 2. Spectres de diffusion pour 4 matériaux différents mesurés à 12° et 32 kV à partir d'un faisceau avec un spectre incident continu (anticathode en Cu).

⁹ MDF : *medium density fiberboard*, panneau de fibres de bois.

1.3 Intensité de diffusion à différentes teneurs en eau

La figure 3 résume les moyennes angulaires par canal pour les 185 positions dans un échantillon en bois de chêne, à l'état humide et à l'état anhydre. Les raies $K\alpha$ et $K\beta$ du molybdène sont clairement visibles. A faible énergie photonique le signal de l'échantillon sec est plus fort que le signal pour le même échantillon humide. A haute énergie, le phénomène inverse est observable.

Sur les courbes moyennes nous avons superposé la variance de la quantité de photons à chaque position de mesure pour chaque canal (il s'agit donc d'une variance du nombre de photons liée à la position angulaire de l'échantillon). Or, si toute la variation statistique est expliquée par la distribution Poisson, la variance angulaire doit être superposée à la moyenne. Nous voyons qu'autour des raies $K\alpha$ et $K\beta$ la variance explose, ce qui est dû à la diffraction des microfibrilles. Néanmoins, à partir de 22 keV, le spectre semble présenter un comportement statistique du type Poisson. Ce résultat permet de déduire qu'à partir de 22 keV le signal n'est pas altéré par l'orientation de l'échantillon ; cette gamme d'énergie correspond donc très certainement au signal de l'eau. Cependant dans cette gamme énergétique le signal pour le bois anhydre n'est pas nulle. Très probablement, ce bruit de fond est généré par la partie amorphe du bois.

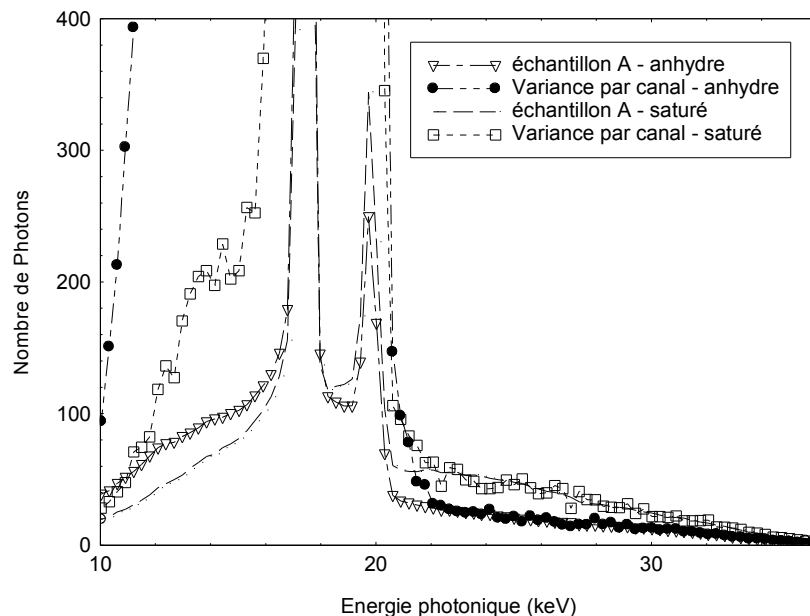


Figure 3. Spectres des moyennes et variances angulaires d'un faisceau diffracté à $10,5^\circ$ pour un échantillon à l'état anhydre et à l'état saturé (anticathode en Mo).

Les figures 4a et 4b ont été construites de façon similaire à la figure 2, cette fois pour un angle de diffusion de 15° . Le spectre présente une haute variance angulaire autour les raies $K\alpha$ et $K\beta$, mais aussi présente un pic de la variance angulaire et de la moyenne autour 13 keV. Nous pouvons expliquer ces pics comme la mise en évidence de la diffraction du plan cristallin (002) de la cellulose (équation de Bragg avec $\theta = 7,5^\circ$ et $d = 0,39$ nm).

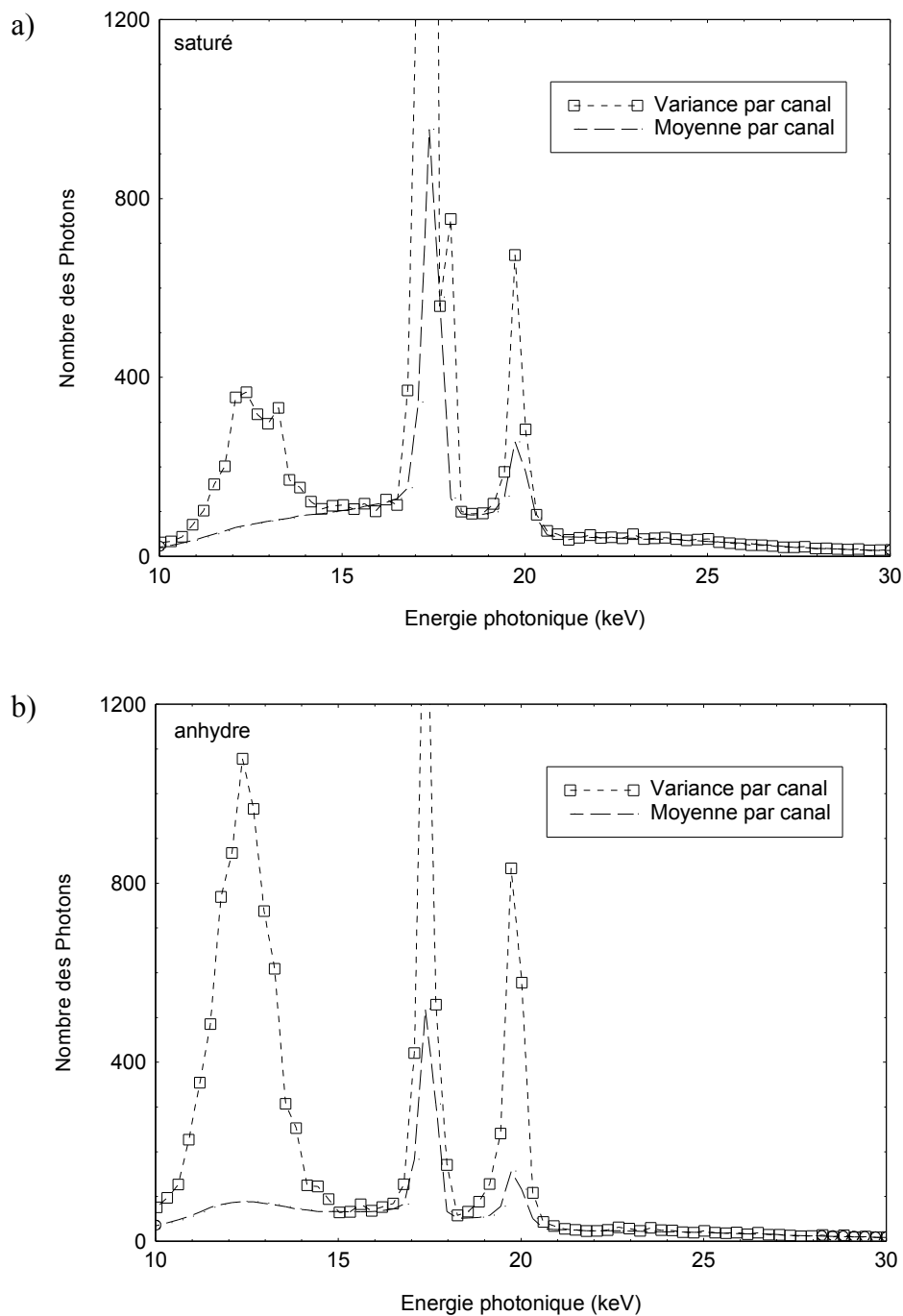


Figure 4. Spectres des moyennes et variances angulaires d'un faisceau diffracté autour de 15° pour un échantillon à l'état anhydre et à l'état saturé.

Les figures 5a et 5b ont été faites pour un angle de diffusion de 18° . L'intensité de diffusion est beaucoup plus faible qu'à 15° . Les spectres présentent, pour chaque canal, les variances angulaires superposées aux moyennes. A cet angle, le pic de diffraction du plan (002) de la cellulose est autour de 10,4 keV (à peine visible ici pour l'échantillon anhydre). Par conséquent, les mesures de diffusion deviennent indépendantes de l'orientation angulaire de l'échantillon.

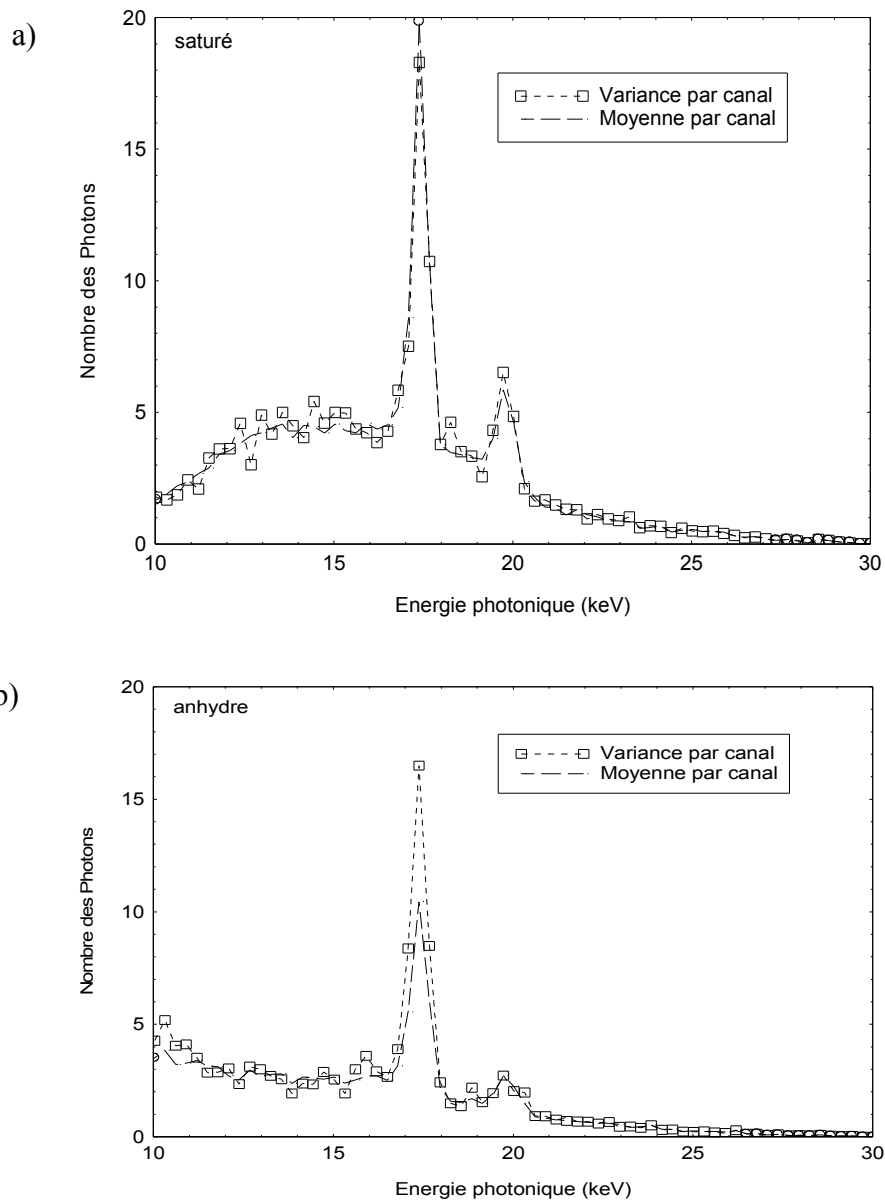


Figure 5. Spectres des moyennes et variances angulaires d'un faisceau diffracté autour de 18° pour un échantillon à l'état anhydre et à l'état saturé.

2. Estimation de l'intensité de diffusion de l'eau

2.1 Approche théorique

En supposant que le bois ne perturbe pas le signal provenant de l'eau (situation peu réaliste mais utile pour l'analyse), nous pouvons penser que l'intensité de la diffusion donne une mesure de la « concentration » d'eau contenu dans l'échantillon. Or, plus la concentration d'eau est élevée, plus la diffusion est intense, et plus l'atténuation du signal est importante. Donc, l'intensité de diffusion (I_d) doit être standardisée par rapport au flux transmis (I_t) selon :

$$R' = \frac{I_d}{I_t}$$

La valeur de R' pour un angle de diffusion θ peut être mesurée expérimentalement avec une relative simplicité en utilisant deux capteurs : l'un travaillant en diffusion et l'autre travaillant en transmission. Parallèlement, pour une configuration de mesure donnée, la valeur de R' peut être obtenue par intégration numérique d'une équation théorique (Magalhaes *et al.*, 1995). Aux paragraphes suivants, nous détaillerons l'obtention de cette équation.

Si nous définissons σ comme la section efficace électronique cohérente, alors, la quantité de photons dI diffusés à partir du faisceau incident I_0 par une couche d'épaisseur infinitésimale dx est :

$$\frac{dI}{dx} = I_0 \eta^e \sigma$$

Ainsi, la quantité de photons diffusés dans un angle solide infinitésimal $d\Omega$ est calculée selon :

$$\frac{d^2I}{d\Omega dx} = I_0 \eta^e \frac{d\sigma}{d\Omega}$$

Lorsque un faisceau mono-énergétique est diffusé dans un angle θ par une couche d'épaisseur d non infinitésimale, il est atténué avant et après le phénomène de diffusion (Fig. 6). Ainsi :

$$\frac{d^2 I}{d\Omega dx} = I_0 \eta^e \frac{d\sigma}{d\Omega} e^{-\mu x} e^{-\mu(d-x)/\cos\theta}$$

où :

μ : coefficient d'atténuation linéaire

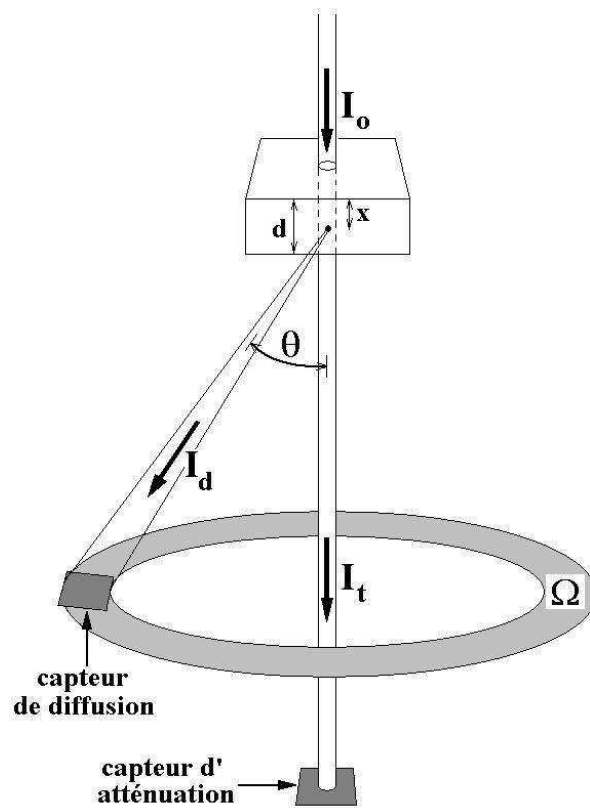


Figure 6. Schéma de la diffusion et transmission pour un angle θ dans un angle solide Ω .

En intégrant sur toute l'épaisseur de l'échantillon nous obtenons :

$$\frac{d I}{d\Omega} = I_0 \eta^e \frac{d\sigma}{d\Omega} e^{-\mu d / \cos\theta} \int_0^d e^{\mu(1-\cos\theta)x / \cos\theta} dx$$

Or, comme le flux transmis correspond à $I_0 e^{-\mu d}$, un rapport $R(\theta, d)$ entre le flux diffusé et le flux transmis, peut être défini par :

$$R(\theta, d) = I_0 \eta^e \frac{d\sigma}{d\Omega} e^{-\mu d / \cos\theta} \int_0^d e^{\mu(1-\cos\theta)x/\cos\theta} dx \frac{1}{I_0 e^{-\mu d}}$$

A l'aide de relations algébriques simples, nous obtenons pour $R(\theta, d)$ l'expression suivante:

$$R(\theta, d) = \eta^e \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{1}{Q} (1 - e^{-Qd})$$

avec :

$$Q = \frac{\mu(1 - \cos\theta)}{\cos\theta}$$

En intégrant l'expression précédente pour un angle solide compris dans la plage limitée par θ_1 et θ_2 , nous obtenons une expression $R'(d)$ qui correspond au rapport entre les photons diffusés et les photons transmis pour une épaisseur de l'échantillon égale à d :

$$R'(d) = \int_{\theta_1}^{\theta_2} \eta^e \frac{1}{Q} (1 - e^{-Qd}) \frac{d\sigma_{Tho}}{d\Omega} F^2(x, Z) 2\pi \sin \theta \, d\theta \quad [\text{VI.1}]$$

Le calcul de cette équation a été implémenté numériquement dans un programme en langage C. Pour le calcul théorique l'intensité de diffusion cohérente nous utilisons le Facteur de Forme $F^2(x, Z)$ d'après Poletti *et al.* (2002) que nous détaillons dans l'Annexe 1. Par ailleurs, nous avons utilisé les coefficients d'atténuation donnés par XCOM.

2.2 Effet lié à la poly-énergie du faisceau

Les expressions développées précédemment pour un rayonnement mono-énergétique, peuvent être généralisées grâce à une sommation sur l'ensemble du spectre incident. L'imprécision de cette approche est donnée principalement par la dispersion causée par la FWHM du capteur et par la diffusion Compton provenant de l'échantillon. Ainsi, ces deux sources d'imprécision peuvent être énoncées par :

- Le capteur présente une résolution énergétique supérieure à la résolution énergétique utilisée pendant l'acquisition dans l'analyseur multicanaux.
- Le rayonnement diffusé par l'échantillon par effet Compton est négligeable, ou au moins son décalage énergétique est bien inférieure à la résolution énergétique utilisée pour l'acquisition. Dans ce dernier cas, nous pouvons additionner les deux types de diffusion pour chaque niveau énergétique.

2.3 Application du modèle.

En utilisant cette méthode numérique, nous avons calculé le rapport R' généré pour 4 couches d'eau avec des épaisseurs différentes. Dans un premier cas, nous avons intégré l'équation IV.1 dans une plage de $\theta_1=10,4^\circ$ jusqu'à $\theta_2=10,6^\circ$ (Fig. 7a). La courbe résultante présente une allure proche de la fonction $F^2(x,Z)$ avec de très faibles valeurs de R' à cause de la petite surface d'intégration. Dans un second cas, nous avons intégré l'équation dans une plage de $\theta_1=8,0^\circ$ jusqu'à $\theta_2=13,0^\circ$ (Fig. 7b). Le profil obtenu est arrondi, à cause de l'ampleur de l'angle de diffusion. Les valeurs obtenues sont plus élevées car la plage d'intégration est plus importante mais intrinsèquement elles restent faibles. Par conséquent, le taux de comptage d'un capteur en diffusion atteindra quelques millièmes du taux de comptage d'un capteur en transmission.

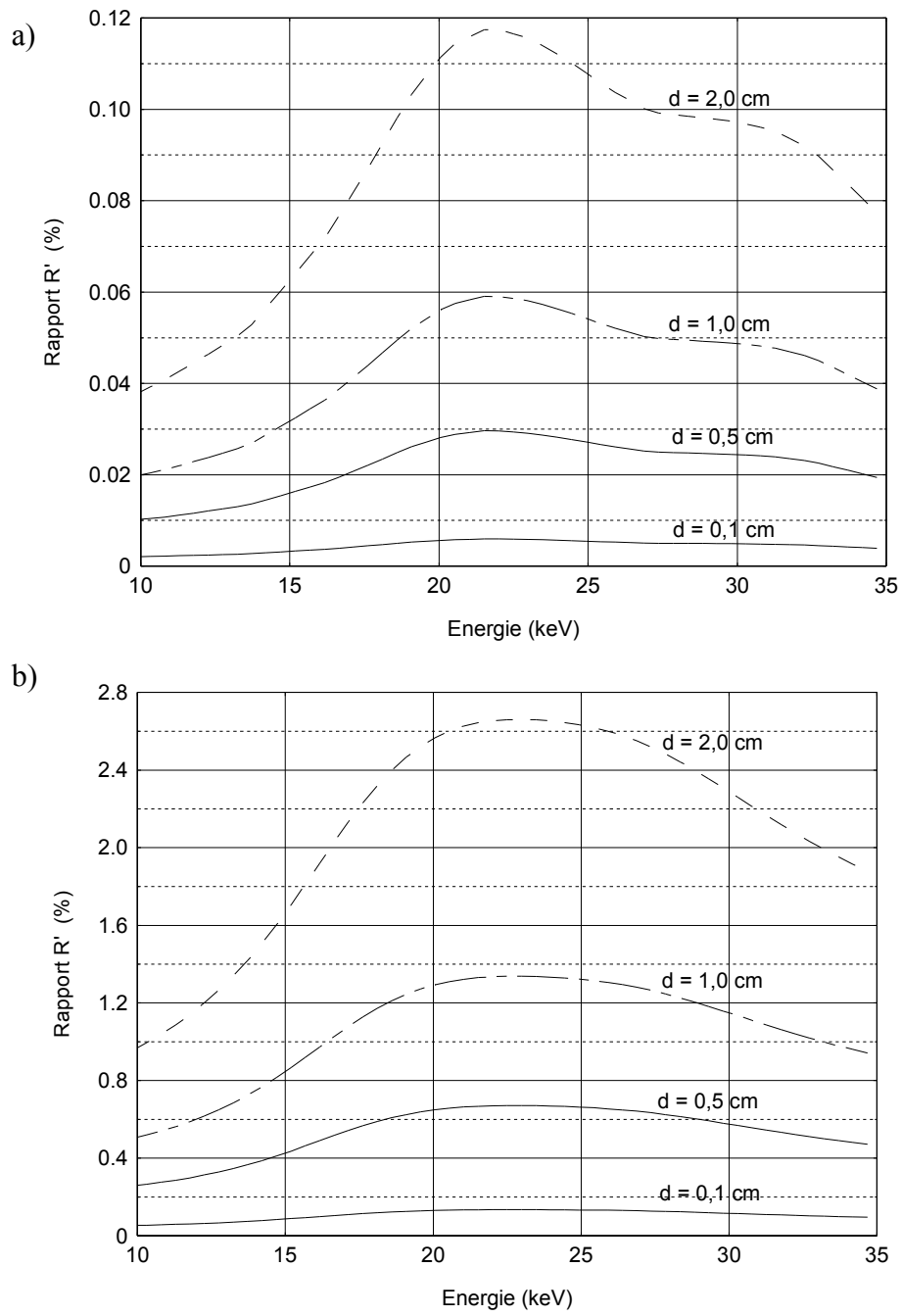


Figure 7. Résultats de calcul de R' pour 4 épaisseurs et deux angles solides différents.

(a) $\theta_1 = 10,4^\circ - \theta_2 = 10,6^\circ$ et (b) $\theta_1 = 8,0^\circ - \theta_2 = 13,0^\circ$

3. Mesure expérimentale de l'intensité de diffusion

3.1 Description du matériel expérimental

L'acquisition des spectres se déroule de manière similaire à la mesure de l'AMF mais avec deux capteurs travaillant simultanément : l'un en transmission et l'autre à un angle de $10,5^\circ$. Nous avons utilisé une source dont l'anticathode est en Cuivre car elle présente un spectre continu dans la plage énergétique qui nous intéresse (de 15 à 32 keV).

Nous avons conçu un système capable de réaliser la mesure de la masse de l'échantillon afin d'obtenir sa teneur en eau au cours de l'essai (Fig. 8 et Annexe 2).

Le capteur de diffusion a été fixé le plus proche possible de l'échantillon pour maximiser la détection du rayonnement diffusé, mais sans obstruer le faisceau transmis. Dans le même but, nous n'avons pas utilisé de collimateur à la tête du capteur de diffusion. D'autre part, les capteurs sont montés sur une platine manuelle XY de précision qui permet de régler leur positionnement par rapport au faisceau. L'alignement a été réalisé au moyen d'un foyer de lumière conventionnelle à la place de la source X.

Au cours de la mesure de transmission et de diffusion de rayons X, nous séchons à température ambiante l'échantillon. L'échantillon est initialement saturé d'eau et il tend progressivement vers la teneur en eau d'équilibre, correspondant aux conditions de l'air ambiant de la salle d'essai du laboratoire (8 à 10%).

Chaque capteur est connecté à un analyseur multicanaux *Amptek-MCA8000A* lequel est connecté au PC de contrôle au moyen de deux connections RS-232. Le logiciel de gestion codifié en Visual Basic, gère aussi : une centrale d'acquisition *Hewlett-Packard* enregistrant les conditions hygrométriques de l'air, une balance *Sartorius* et une interface de platines motorisées *Newport-Microcontrôle*, au moyen de 3 autres ports RS-232. Par ailleurs, le logiciel gère un petit ventilateur de brassage de l'air autour de l'échantillon, au moyen du port parallèle.

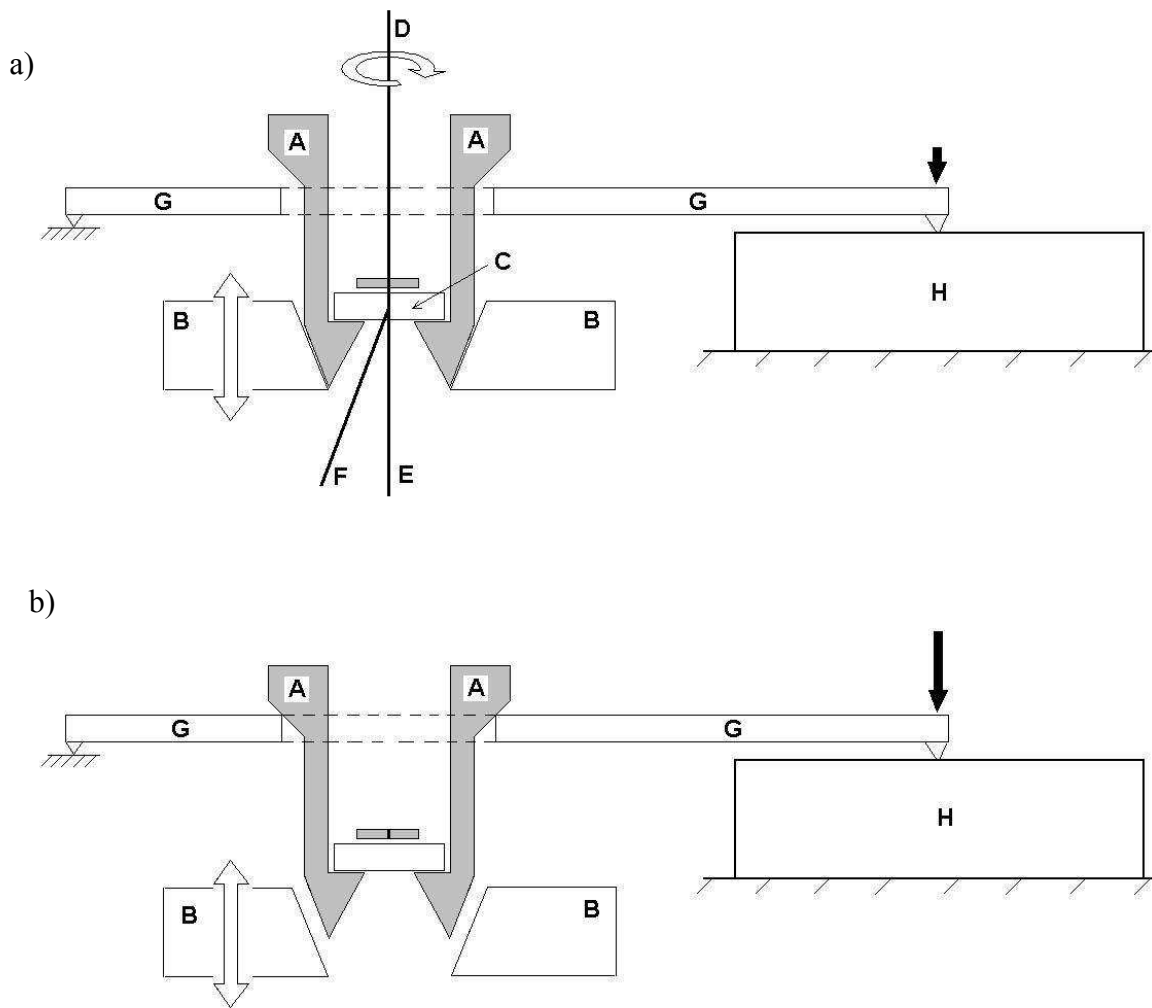


Figure 8. Coupe schématique du système d'entraînement rotatif et de la pesée de l'échantillon.
 (a) position pour mesurer le rayonnement, (b) position pour mesurer le poids de l'échantillon.
 (A) porte-échantillon, (B) poulie, (C) échantillon et collimateur, (D) rayonnement incident, (E) rayonnement transmis, (F) rayonnement diffusé, (G) poutrelle à 3 appuis et (H) balance.

3.2 Déroulement automatique de l'acquisition

Tout au début, nous mesurons le poids initial de l'échantillon et son volume au moyen de la poussée d'Archimède. Compte tenu que l'échantillon présente une faible surface d'échange car il est enfermé dans le porte-échantillon, il atteindrait sa teneur en eau d'équilibre après plusieurs jours. Pour accélérer la perte de teneur en eau, nous utilisons un petit ventilateur qui sert à brasser l'air à sa surface inférieure. Le fonctionnement du ventilateur est commandé par le logiciel de contrôle, car la mesure précise du poids exige d'arrêter le brassage.

Pour réaliser une pesée, le logiciel de contrôle éteint le ventilateur de brassage, fait tourner le porte-échantillon jusqu'à une position « zéro », et enregistre le poids initial du support ($C_{initial}$). Ensuite, la platine de déplacement vertical descend la poulie B de manière à ce que le porte-échantillon repose sur le support G. Une nouvelle mesure du poids est alors effectuée ($C_{mesuré}$). Puis, la platine remonte la poulie B jusqu'à sa position de travail. Une seconde acquisition du poids du support G est effectuée à vide (C_{final}). Enfin, la poulie amène le porte-échantillon jusqu'à la nouvelle position azimutale et le ventilateur est remis en route. La charge corrigée du porte-échantillon ($C_{corrigé}$) est calculée selon :

$$C_{corrigé} = C_{mesuré} - \frac{(C_{initial} + C_{final})}{2}$$

Il faut noter que la forme conique de l'interface entre les éléments A et B permet leur centrage et l'alignement de l'échantillon par rapport au faisceau X après chaque repositionnement.

A la fin de l'essai, qui dure entre 24 et 72 heures selon les conditions hygrométriques de l'air de la salle, nous mesurons le poids final de l'échantillon. Ainsi, les poids final et initial de l'échantillon servent à créer une relation entre la charge $C_{corrigé}$ et la masse de l'échantillon à un instant quelconque de l'essai. Finalement l'échantillon est séché à 103°C pendant 24 heures pour obtenir la masse anhydre qui permet de remonter à la teneur en eau à chaque instant de l'expérience. Il faut noter que tout au long de l'expérience, nous enregistrons la température de l'eau de refroidissement, celle de l'ambiance et l'humidité relative auprès de l'échantillon

3.3 Conditions de mesure

Le faisceau X attaque l'échantillon dans la direction radiale du bois. L'échantillon a été scié à 10 mm d'épaisseur nominale, selon la direction du faisceau. Le rayonnement poly-énergétique, limité à 30 keV, traverse un collimateur de 1 mm de diamètre juste avant

d'attaquer l'échantillon. Ce faisceau incident n'a pas été durci, dans l'objectif d'obtenir un spectre continu plus élevé autour de 15 à 20 keV, c'est-à-dire, dans la plage de diffraction du plan cristallin (002) du bois.

Vue la petite taille du capteur, qui entraîne un trop faible taux de comptage du rayonnement diffusé (parfois moins d'un photon par seconde), nous avons décidé d'atténuer le faisceau transmis par l'échantillon. Ainsi, nous avons pu augmenter l'intensité du générateur, dans le but d'obtenir un flux diffusé plus important sans saturer le capteur de transmission (Fig. 9). Ce « post-filtrage » a été réalisé au moyen d'une plaque d'Aluminium.

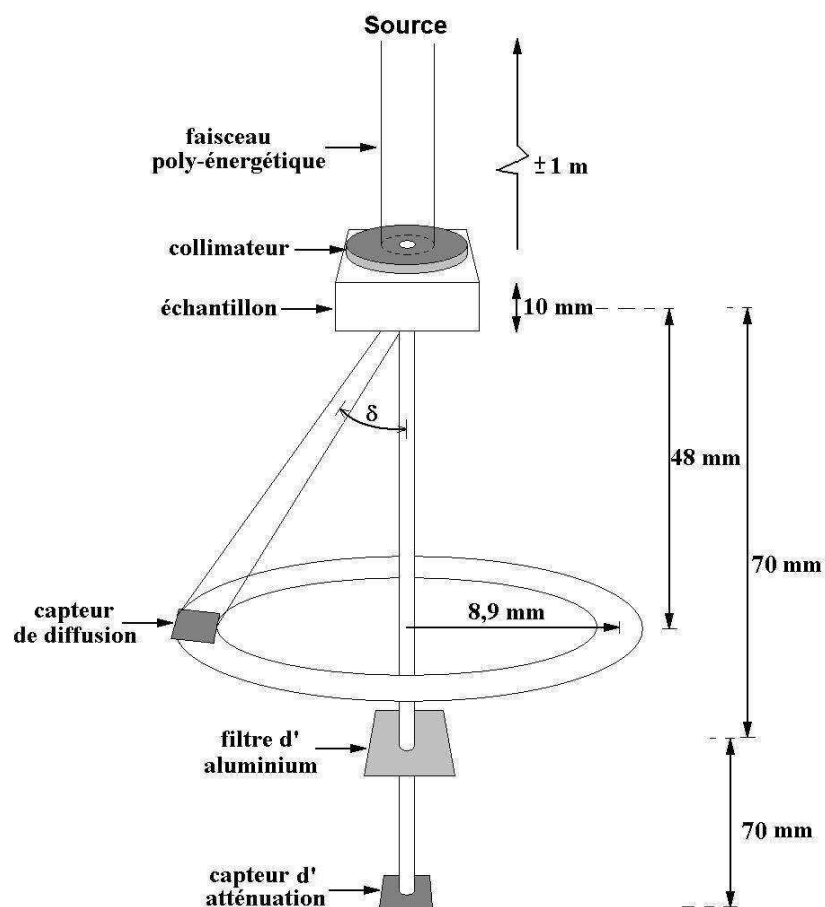


Figure 9. Conditions géométriques de mesure (valeurs approximatives). Note : l'angle δ mesure $10,5^\circ$ et il correspond à 2θ dans l'équation de Bragg et à θ dans l'équation de Thomson.

L'atténuation produite par la plaque d'Aluminium a été mesurée dans une autre expérience. Ainsi, ces coefficients d'atténuation expérimentaux ont été utilisés pour corriger numériquement les flux transmis.

Des déplacements verticaux réalisés avec la platine motorisée permettent de régler l'angle de diffusion en fonction de l'épaisseur de l'échantillon. Aussi ces déplacements verticaux permettent d'optimiser la précision géométrique de l'ensemble.

En raison de la géométrie de l'expérience, l'élément sensible du capteur ($3 \times 3 \text{ mm}^2$), représente 5,3% du cercle 2θ , c'est-à-dire, qu'il recouvre à peu près 19° en azimut. Par conséquent, la résolution angulaire utilisée a été fixée à 15° afin de maintenir une correspondance avec ces 19° de recouvrement. Par ailleurs, le rapport R' obtenu expérimentalement doit être corrigé en considérant ce recouvrement.

Dans ces conditions, un tour complet autour du cercle 2θ est réalisé toutes les 24 mesures ($24 \times 15^\circ = 360^\circ$). Or, comme le temps de comptage a été établi à 120 secondes, le mécanisme réaliserait un tour toutes les 48 minutes. Cependant, en ajoutant le retard généré par le processus de pesée (durée de 2,5 minutes, réalisée typiquement toutes les 12 minutes), les déplacements motorisés et l'acquisition des données, le système réalise un tour complet environ toutes les heures.

REMARQUE : Dans l'étape de traitements de données, nous avons moyenné les 24 spectres obtenus pour chaque tour, car l'intensité spectrale liée au plan cristallin (002), autour de 17,5 keV, varie en fonction de la position azimutale du capteur.

4. Résultats

4.1 Précision de la pesée

Nous avons évalué la précision du système de pesée au moyen d'un essai avec un échantillon dont le poids est invariant. La figure 10a présente l'évolution de la charge sur la poutrelle à vide tandis que la figure 10b présente l'évolution de la charge avec le porte-échantillon. Nous pouvons observer que pendant les 5 premières heures il existe un effet d'accommodement du système qui s'atténue presque complètement après correction.

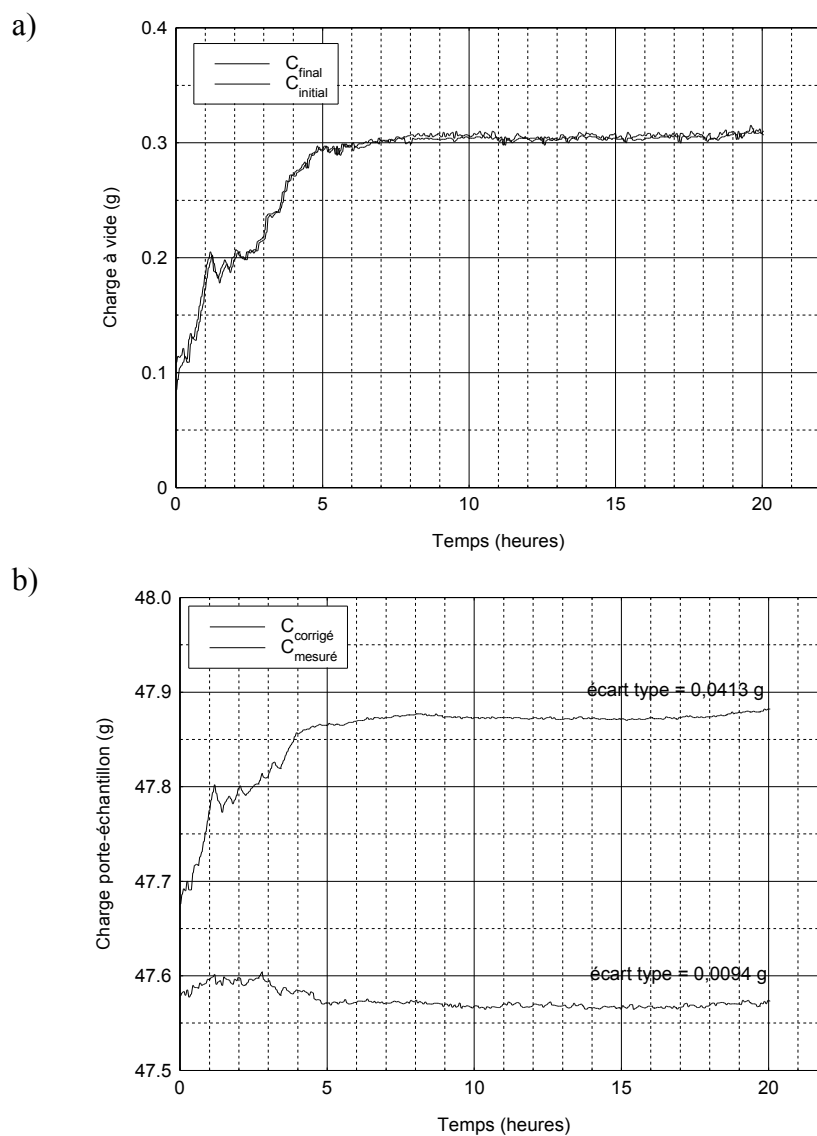


Figure 10. Evolution temporelle de la charge.

La balance utilisée a une précision de 0,01 g avec un affichage à 0,001 g. L'écart type de la mesure corrigée atteint 0,0094 g, valeur très similaire à la précision de l'appareil. En d'autres termes, si la pesée était faite de façon directe, pour un échantillon typique de 0,80 g de masse anhydre, cette précision représenterait 1,25% d'incertitude. Nous pouvons considérer cette valeur comme satisfaisante pour le calcul de la teneur en eau de l'échantillon.

4.2 Vérification de l'interchangeabilité des deux capteurs

Comme le calcul du rapport R' dépend des mesures réalisées par deux capteurs différents, il est important de comparer ses comportements. Pour cela, ils ont été placés alternativement en position de mesure du faisceau diffusé et du faisceau transmis par une cale d'eau déminéralisée. Dans les résultats présentés sur la figure 11 nous pouvons observer que les spectres mesurés sont différents. En effet, les spectres mesurés avec le capteur CZT sont plus bas que ceux mesurés avec le capteur CdTe.

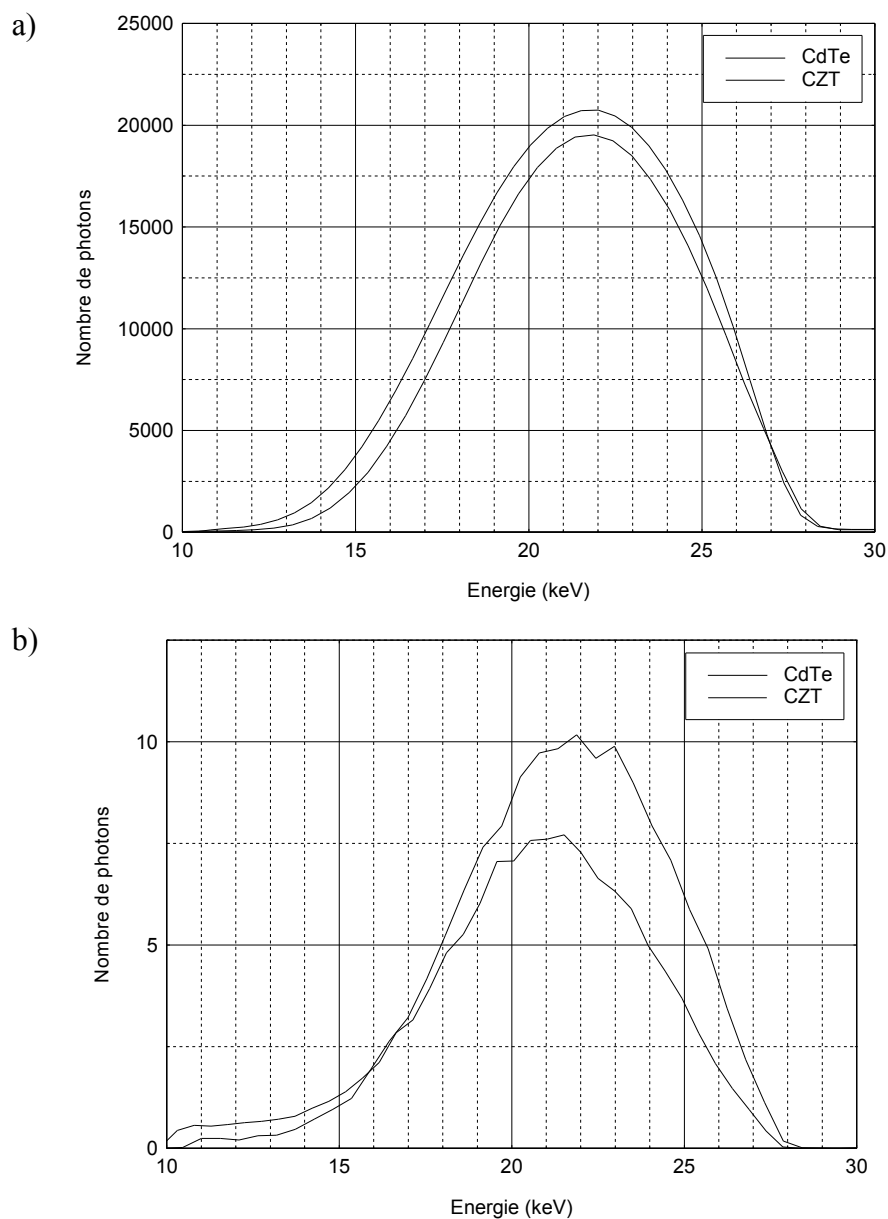


Figure 11. (a) Spectres en transmission et (b) spectres en diffusion pour une cale d'eau de 1 cm d'épaisseur. (Tension d'alimentation de 28 kV).

4.3 Obtention de R' pour un échantillon d'eau

Nous avons calculé le rapport R' obtenu pour 1 cm d'eau à partir de nos données expérimentales (Fig. 12). La courbe I_d^{CdTe} / I_t^{CZT} représente le rapport R' lorsque le capteur CdTe détecte le flux diffusé et le capteur CZT détecte le flux transmis. Au contraire, la courbe I_d^{CZT} / I_t^{CdTe} représente le rapport R' lorsque le capteur CZT détecte le flux diffusé et le capteur CdTe détecte le flux transmis.

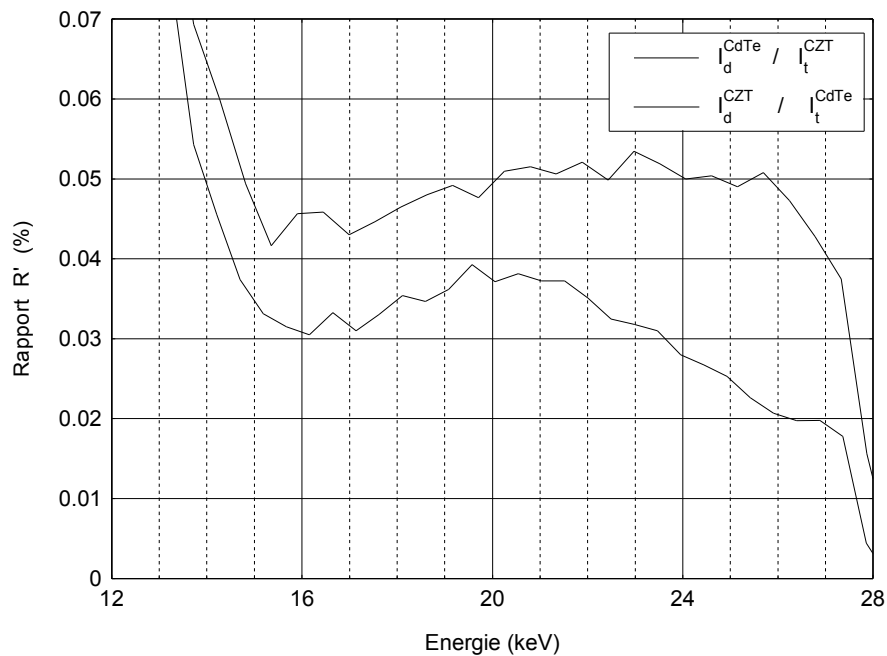


Figure 12. Résultat expérimental R' de 1 cm d'eau.

Compte tenu du fait que le rapport R' calculé avec les deux capteurs diffère, pour pouvoir confronter les résultats expérimentaux avec notre modèle théorique nous avons calculé le rapport R' comme I_d^{CdTe} / I_t^{CdTe} . Le résultat de cette confrontation est présenté sur la figure 13.

Notons que d'une part les allures des courbes théoriques et expérimentales sont très proches et d'autre part, il semble qu'au moins une partie de l'écart entre $R'_{théorique}$ et $R'_{expérimental}$ puisse être expliqué par l'imprécision géométrique du montage.

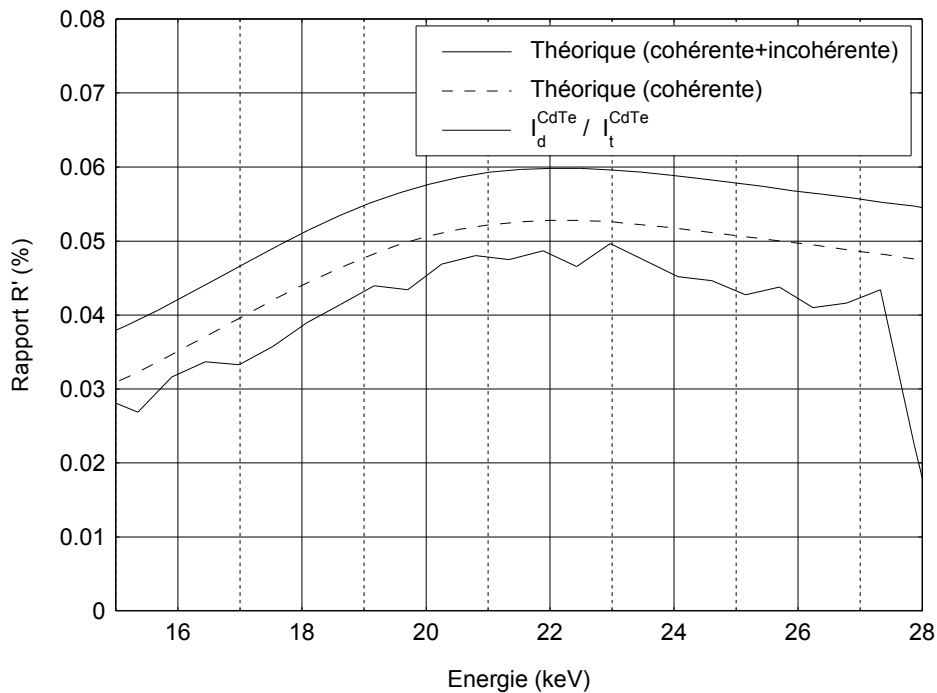


Figure 13. Résultats de R' pour 1 cm d'eau obtenus expérimentalement (capteur CdTe) et théoriquement.

REMARQUES :

Pour l'obtention de la figure 13 nous avons réalisé les considérations suivantes :

- Le calcul de R' considère les conditions géométriques expérimentales. Ainsi, le capteur recouvre une zone limitée par $\theta_1 = 8,737^\circ$ et par $\theta_2 = 12,267^\circ$ avec un recouvrement de 5,375% du cône de diffusion.
- Le calcul de diffusion incohérente (Compton) de l'eau utilise des valeurs de $S(x,Z)$ égales à 1,0 pour une énergie quelconque.

- La densité électronique de l'eau a été calculée comme le produit entre sa densité moléculaire ($3,34 \times 10^{22} \text{ molecules } g^{-1}$) et une valeur de Z_{eff} égal à 7,2.
- L'atténuation du rayonnement diffusé considère des coefficients d'atténuation de l'eau obtenus au moyen du logiciel XCOM.
- Le décalage énergétique généré par l'effet Compton a été négligé.
- L'influence des deux feuilles de Mylar de 0,1 mm d'épaisseur qui enveloppent la couche d'eau a été négligée.

4.4 Obtention de R' en fonction de la teneur en eau

4.4.1 Evolution des conditions de l'ambiante

La température de l'air auprès de l'échantillon a varié progressivement de 24,8°C à 22,8°C tandis que l'humidité relative a varié de 42% à 37% avec deux inflexions provoquées par les variations journalières entre le jour et la nuit (Fig. 14).

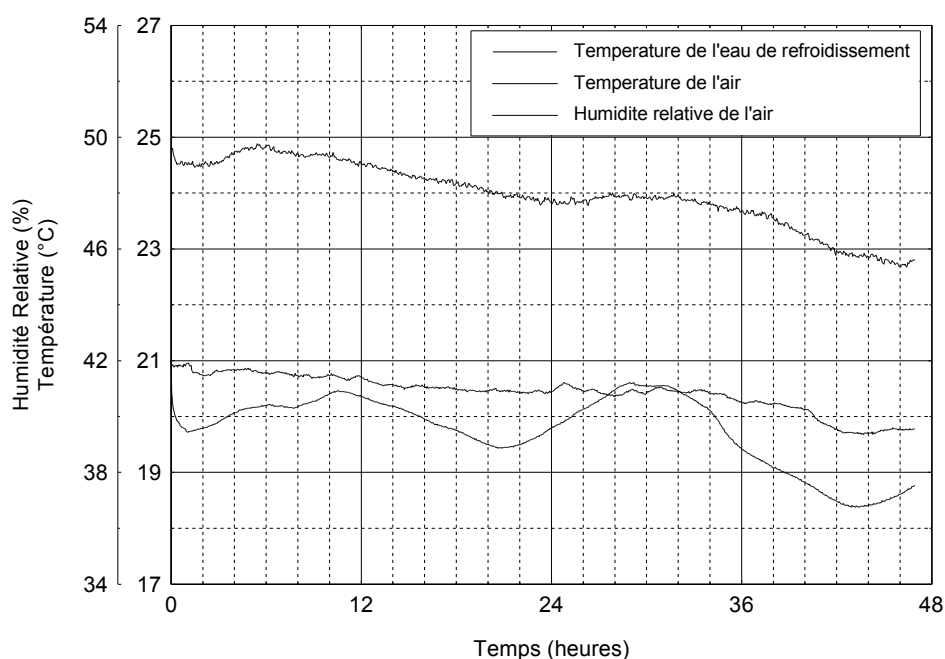


Figure 14. Evolution de la température d'air, de l'eau de refroidissement et de l'humidité relative de l'air au cours de l'essai.

4.4.2 Evolution de la masse de l'échantillon

Le volume de l'échantillon à l'état vert est de 2,310 g, sa masse anhydre est de 0,736 g, donc, l'infradensité de l'échantillon est de $0,319 \text{ g cm}^{-3}$. La figure 15a présente l'évolution du poids de la poutrelle chargée avec le porte-échantillon tandis que la figure 15b présente l'évolution du poids et de la teneur en eau équivalente. Pendant les deux premières heures d'essai, la valeur de $C_{\text{mesuré}}$ augmente, bien que l'échantillon commence à sécher. Cette anomalie due à l'accommodement du système est corrigée dans la courbe $C_{\text{corrigé}}$.

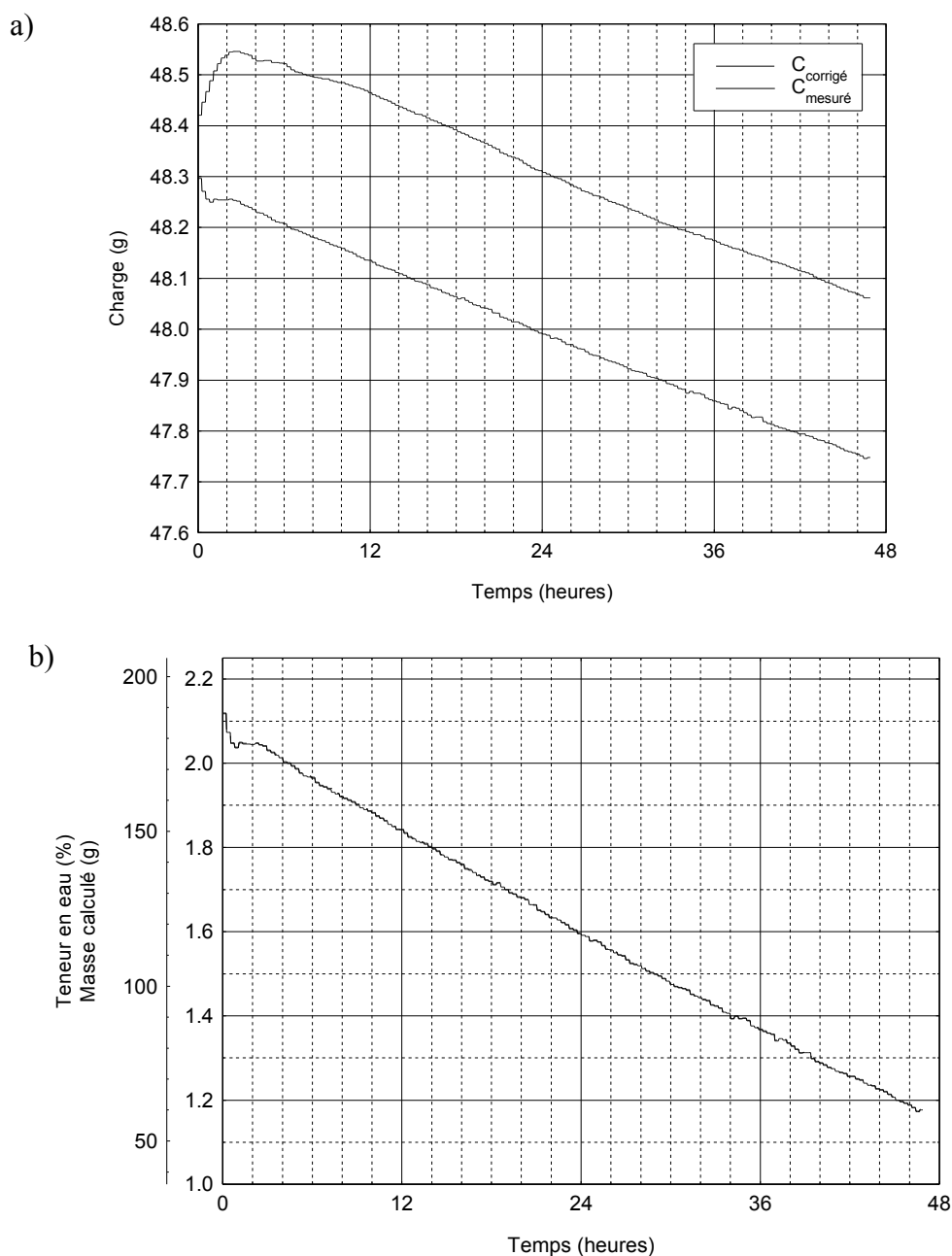


Figure 15. (a) Evolution de $C_{\text{mesuré}}$ et de C_{corrige} au cours de l'essai, (b) équivalence dans la masse de l'échantillon et dans sa teneur en eau.

Sur la figure 15, une charge initiale de 48,297 g mesurée par le système correspond à 2,120 g mesurés pour l'échantillon à l'état vert. Après presque 48 heures, la charge passe à 47,748 g qui correspond à 1,178 g mesurés directement pour l'échantillon sec. Or, nous obtenons une teneur en eau de 188% au début de l'essai et de 60% à la fin. Ainsi, la perte de teneur en eau est presque parfaitement linéaire avec une pente de $2,72 \text{ \% } h^{-1}$. En d'autres mots, la totalité de l'eau éliminée pendant l'essai correspond à de l'eau libre (liquide).

4.4.3 Evolution de l'intensité transmise et diffusée

La figure 16 représente l'évolution du spectre transmis et du spectre diffusé au cours du temps. L'intensité du flux transmis augmente au fur et à mesure que la teneur en eau du bois se réduit et le faisceau devient progressivement moins dur. Pour sa part, le spectre de diffusion présente deux zones : la première se situe au dessus de 16-17 keV, où l'intensité de spectre se réduit, la seconde se situe au dessous de ce point, où l'intensité de spectre augmente.

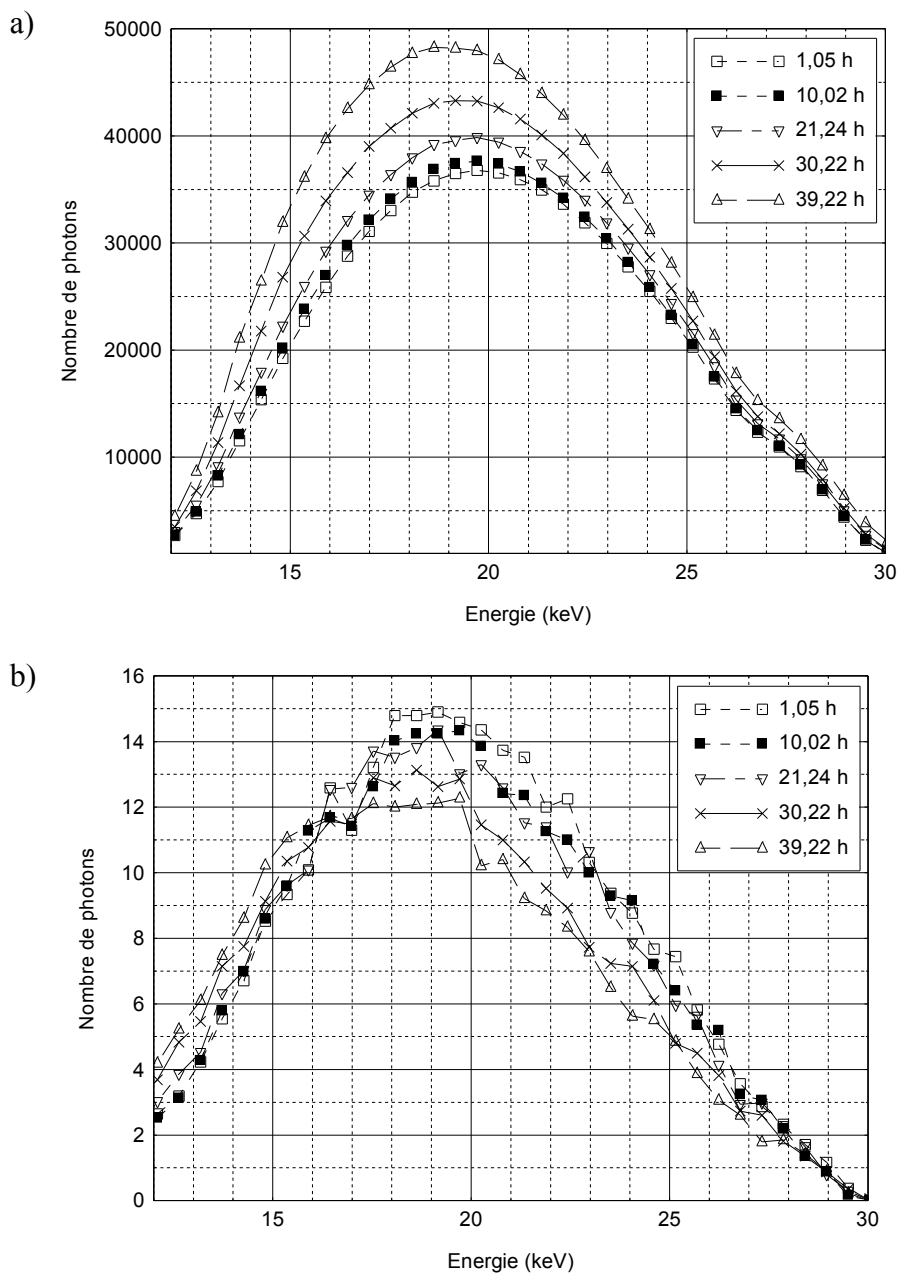


Figure 16. Spectre transmis et spectre mesuré en fonction de la teneur en eau (valeurs moyennés toutes les 120 secondes).

La figure 17a représente le rapport R' calculé pour les courbes de la figure précédente. Nous pouvons observer que la valeur de R' se réduit considérablement au fur et à mesure que l'échantillon sèche. Par ailleurs, nous avons soustrait la courbe R' du bois anhydre (le bruit de fond) à chacune des autres courbes dans le but d'isoler le signal issu de l'eau. La figure 17b présente le résultat de cette opération ($R'_{\text{corrigé}}$). Il faut noter qu'au dessous de 15 keV et autour de 30 keV, les résultats semblent très peu fiables à cause des artefacts du capteur et à cause de la faible intensité des spectres.

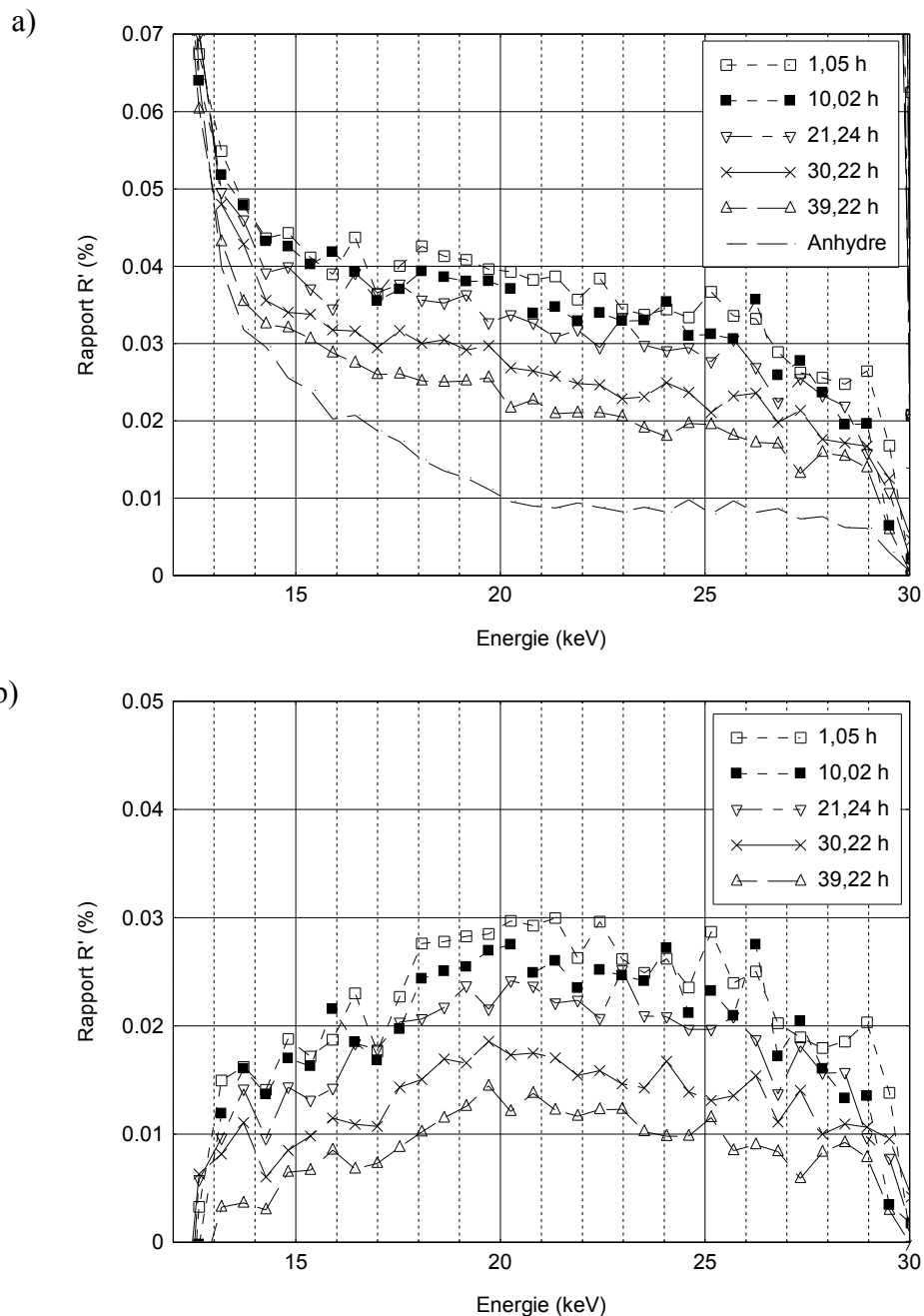


Figure 17. Rapport R' calculé pour différentes teneurs en eau. (a) R' brute, (b) $R'_{\text{corrigé}}$.

4.5 Obtention de R' théorique pour l'échantillon de bois humide

Nous pouvons utiliser le modèle théorique de diffusion pour confronter les courbes de $R'_{\text{corrigé}}$. Pour atteindre cet objectif il faut considérer au moins deux facteurs :

- La phase solide (bois anhydre) ajoute une atténuation additionnelle au rayonnement diffusé.
- La « densité électronique » de l'eau contenue dans l'échantillon se réduit graduellement car il existe une quantité décroissante de molécules d'eau dans un volume à peu près similaire.

La contribution du bois à l'atténuation du rayonnement diffusé est inconnue car la densité du bois autour de la zone de diffusion est inconnue. Pour nous affranchir provisoirement de ce problème nous pouvons supposer que la plupart de l'atténuation provient de l'eau. Cette supposition est plus certaine à des hautes teneurs en eau, mais elle est sans doute très imprécise pour un échantillon presque sec.

Dans l'équation VI.1, la réduction de la densité électronique de l'eau se traduit comme un signal de diffusion plus faible, néanmoins, elle se manifeste aussi par une atténuation plus faible. C'est-à-dire, nous obtenons deux tendances contradictoires. Compte tenu du fait que le parcours moyen de photons dans l'eau dépasse l'épaisseur de l'échantillon, il est évident que l'atténuation du faisceau diffusé joue un rôle moins important.

Nous calculons la densité électronique de l'eau à partir du volume de l'échantillon et de la masse d'eau contenue. Ce volume ne change pas au cours de l'essai car le retrait de l'échantillon a du être nul (domaine d'eau libre). La masse d'eau contenue est calculée comme la masse de l'échantillon à un instant donné moins la masse anhydre qui est 0,736 g.

Le tableau VI.1 présente le résultat du calcul de la densité électronique contenue dans l'échantillon à 5 instants différents pendant l'expérience. En utilisant les valeurs de densité électronique du tableau VI.1 et au moyen de notre modèle théorique de diffusion, nous avons

calculé le rapport R' théorique. Les résultats confrontés à ceux de la figure 17b sont représentés dans la figure 18.

Tableau VI.1. Calcul de la densité électronique de l'eau contenue dans l'échantillon.

Temps (h)	Masse échantillon (g)	Masse d'eau (g)	Densité d'eau ($g\ cm^{-3}$)	Densité électronique de l'eau ($e^{-}\ cm^{-3}$)
1,05	2,050	1,314	0,569	$1,370 \times 10^{23}$
10,02	1,883	1,147	0,497	$1,196 \times 10^{23}$
21,24	1,652	0,916	0,397	$9,552 \times 10^{22}$
30,22	1,477	0,741	0,321	$7,727 \times 10^{22}$
39,22	1,314	0,578	0,250	$6,027 \times 10^{22}$

Note : Le calcul considère un valeur de Z_{eff} égal 7,2

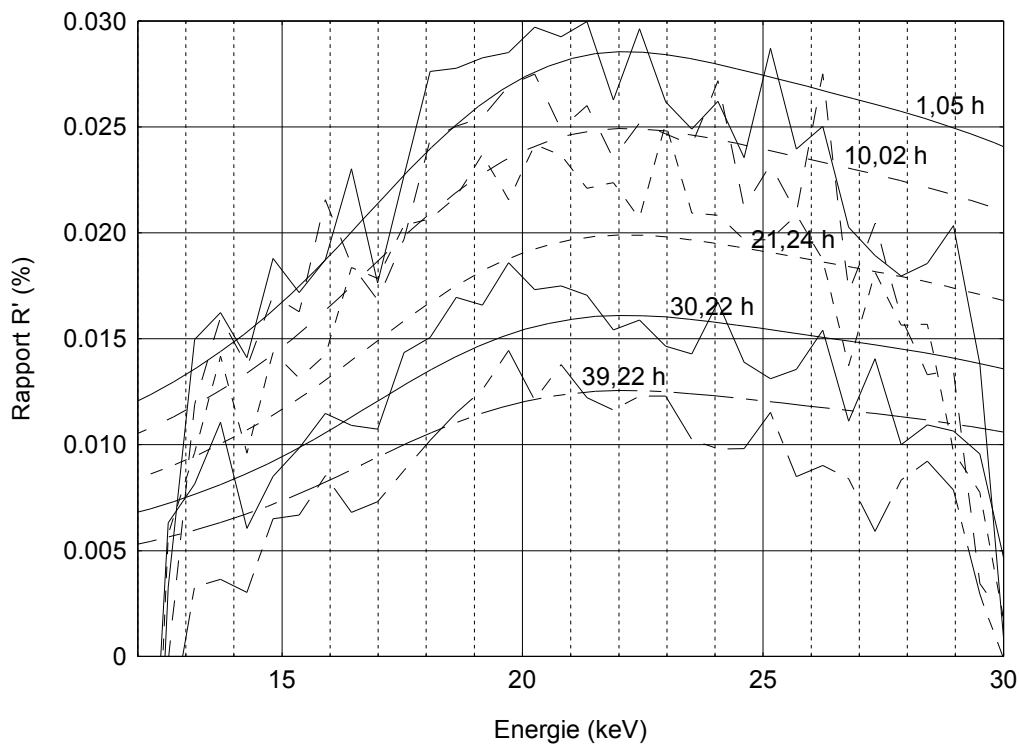


Figure 18. Rapport R' corrigé et rapport R' théorique.

4.6 Intensité du bruit de fond

Dans le but d'obtenir des courbes R' pour différentes densités de bois, nous avons utilisé deux échantillons secs de la même épaisseur mais avec des masses volumiques différentes (bois de chêne et bois d'épicéa). Les résultats pour les deux essences sont présentés dans la figure 19.

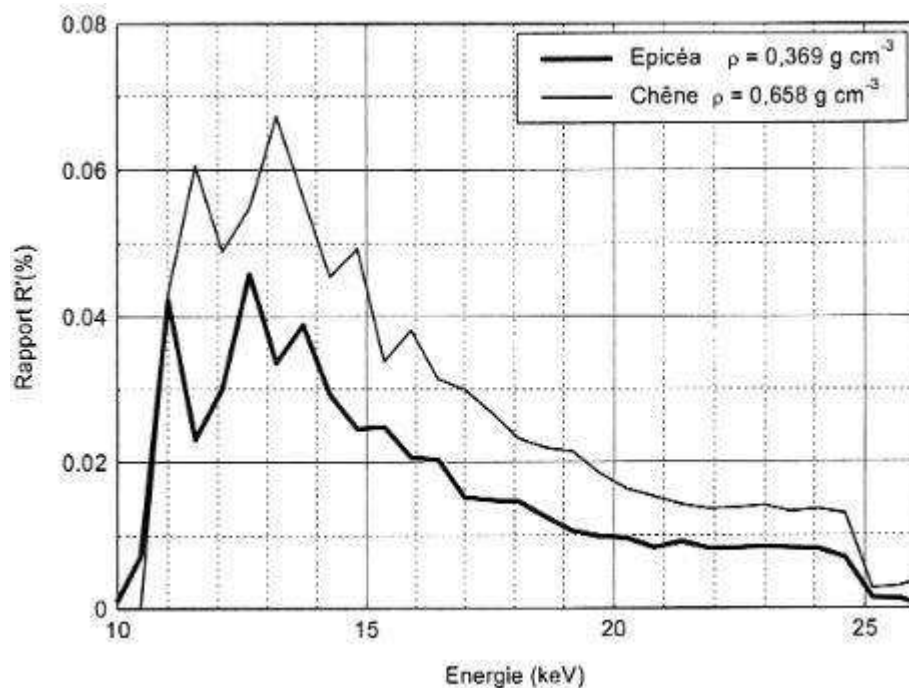


Figure 19. Spectres de diffusion pour deux échantillon anhydres avec différent densité.

Nous pouvons observer que l'intensité du bruit de fond dépend de la densité de l'échantillon. En d'autres mots, la signal de diffusion de l'eau est perturbé par un signal que nous ne pouvons pas connaître a priori car la densité du bois est une inconnue. D'autre part, l'intensité du bruit de fond semble augmenter de façon linéaire avec la densité de l'échantillon.

4.7 Exploration de la variance angulaire

De façon similaire aux figures 3, 4 et 5, nous avons calculé la variance angulaire par canal pour chaque tour de l'échantillon. Les résultats pour les instants 1,05 h et 39,22 h sont présentés sur la figure 20. Nous obtenons un comportement similaire à celui observé précédemment : au dessous de 20 keV une variance angulaire plus forte que la moyenne (phase cristalline) et au dessus de 20 keV une variance similaire à la moyenne (phase amorphe). Cependant pour le bois plus humide l'expression de la phase cristalline semble plus faible.

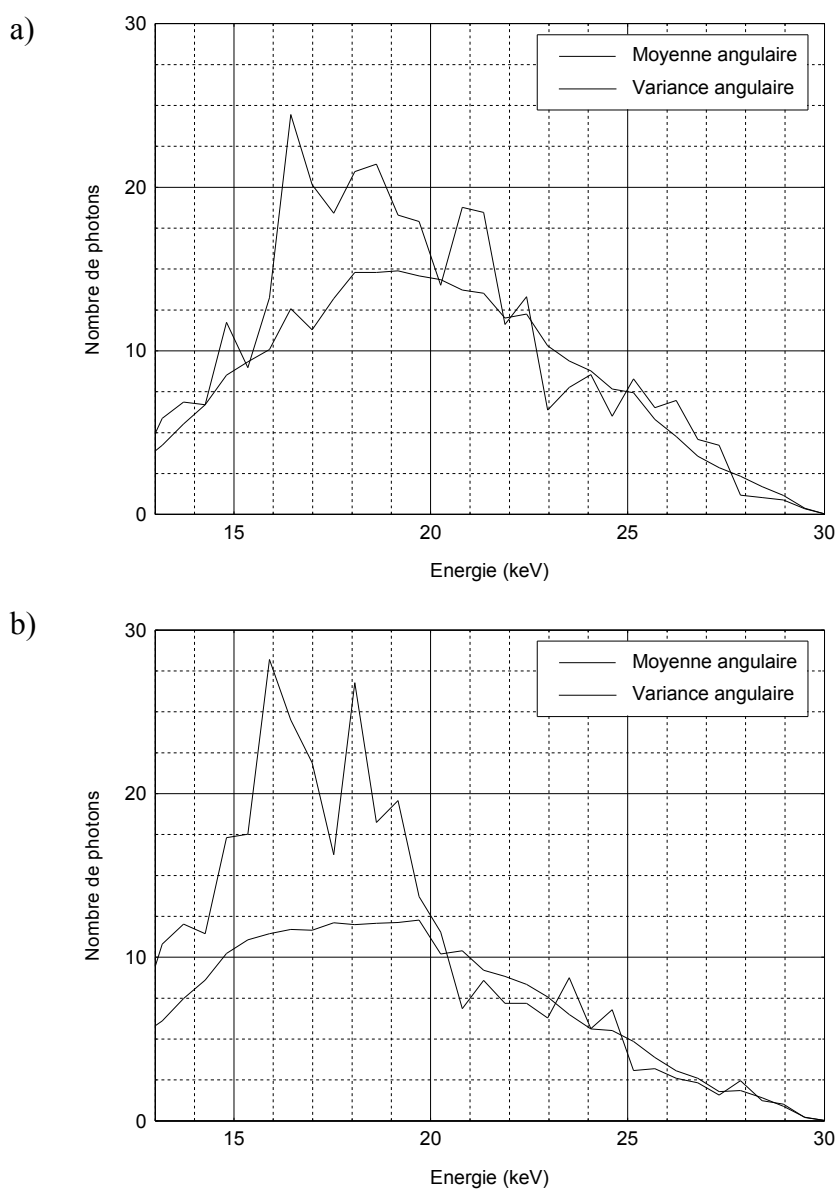


Figure 20. Spectre moyenne de diffusion et sa variance angulaire à deux différents instants de l'expérience (a) 1,05 heures et (b) 39,22 heures.

La figure 21 présente l'intensité de diffraction (dans la plage 15 à 20 keV) en fonction de l'angle azimutal. Nous obtenons les deux pics caractéristiques de la diffraction du plan (002). Le signal après 1 heure (188% de teneur en eau) est un peu plus faible que le signal après 39 heures (60% de teneur en eau). Les signaux à des instants intermédiaires à 1,02 et 39,22 heures (non représentés dans la figure par soucis de clarté), présentent une tendance intermédiaire à ces deux courbes mais sont très bruités.

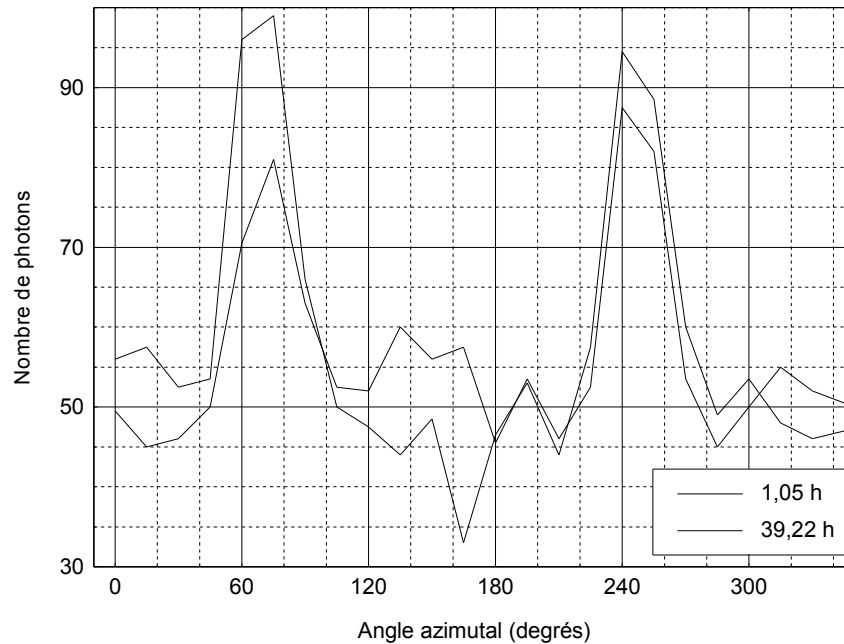


Figure 21. Intensité de diffraction en fonction de l'angle azimutal à deux différents instants de l'expérience (résolution angulaire de 15°)

Ces résultats permettent d'envisager la faisabilité d'utiliser la plage 15 à 20 keV pour standardiser les signaux provenant de l'eau, au moyen d'un rapport entre les deux plages. Cette possibilité a été exploré par Key (1999) dans le but d'estimer la proportion d'eau dans un fluide huileux.

5. Conclusion et Perspectives

Nous avons montré la faisabilité de discriminer par spectrométrie les signaux de diffusion cohérente des rayons X du bois et de l'eau générés simultanément par un échantillon de bois humide.

Nous avons conçu un appareillage expérimental capable de réaliser automatiquement la mesure gravimétrique de la masse de l'échantillon pendant que l'essai de diffraction se déroule. La précision de cette mesure nous semble suffisante pour obtenir des estimations de la teneur en eau valables.

Grâce à un modèle quantitatif des phénomènes de diffusion cohérente et incohérente, nous avons pu estimer l'intensité de la diffusion de l'eau, pour des conditions géométriques de mesure spécifiques. Par la généralisation d'une approche mono-énergétique vers une approche poly-énergétique, nous avons pu confronter nos résultats théoriques avec nos résultats expérimentaux. Nous croyons que l'écart entre ces résultats est suffisamment petit pour considérer que notre modèle de « diffusion atténuée » s'est soldé par un succès.

En revanche, lorsque nous avons utilisé la même approche pour estimer l'intensité de diffusion de l'eau contenue dans le bois humide, les résultats sont moins encourageants. Ce constat est la conséquence d'au moins deux problèmes :

- L'utilisation de deux capteurs avec des comportements différents, ce qui entraîne une erreur dans le calcul expérimental du signal de diffusion.
- Le bruit de fond généré par la phase amorphe du bois s'ajoute au signal provenant des molécules d'eau empêchant ainsi d'estimer la teneur en eau de l'échantillon.

Annexe 1

Facteur de Forme pour l'eau liquide d'après Poletti *et al.* (2002).

Momentum transfer	$F^2(x, Z)/\sqrt{M}$	Momentum transfer	$F^2(x, Z)/\sqrt{M}$
$x (nm^{-1})$		$x (nm^{-1})$	
0,00	0,566	2,40	1,438
0,10	0,566	2,50	1,303
0,20	0,566	2,60	1,165
0,30	0,569	2,80	0,957
0,40	0,571	3,00	0,879
0,50	0,574	3,20	0,864
0,60	0,604	3,40	0,861
0,70	0,636	3,60	0,849
0,80	0,689	3,80	0,820
0,90	0,761	4,00	0,774
1,00	0,842	4,20	0,708
1,10	1,000	4,40	0,636
1,20	1,166	4,60	0,585
1,30	1,392	4,80	0,539
1,40	1,633	5,00	0,537
1,50	1,809	5,20	0,547
1,60	1,874	5,40	0,534
1,70	1,833	5,60	0,508
1,80	1,750	5,80	0,495
1,90	1,651	6,00	0,470
2,00	1,572	6,50	0,426
2,10	1,556	7,00	0,405
2,20	1,540	7,50	0,338
2,30	1,510	8,00	0,372

Note : M est le poids moléculaire de l'eau (18 uma).

Annexe 2

Photographies du montage.



Figure 22. Vue générale de l'appareillage de rayons X.



Figure 23. Vue interne de l'enceinte protégée.

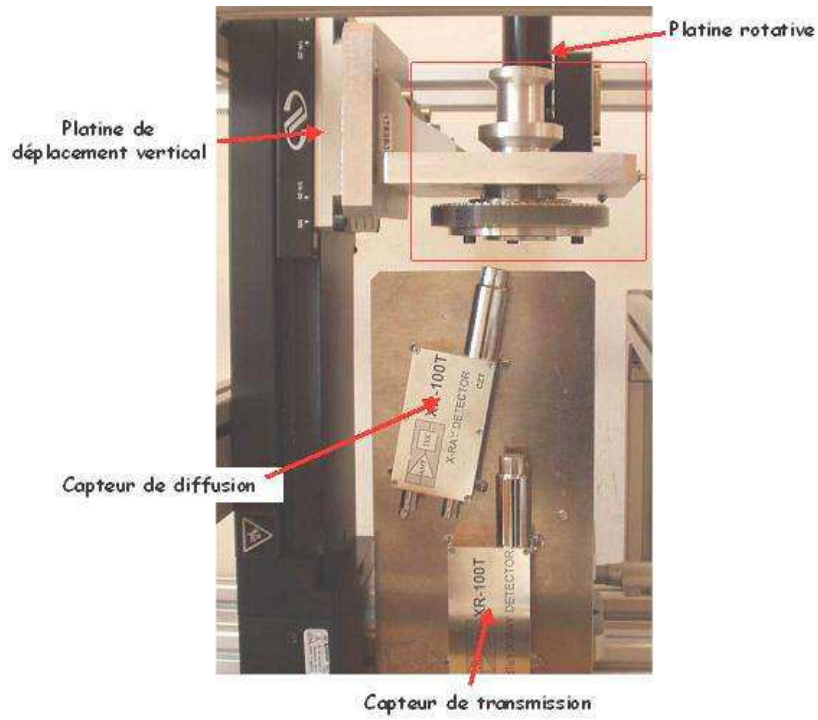


Figure 24. Détails de l'emplacement des capteurs et des platines motorisés.

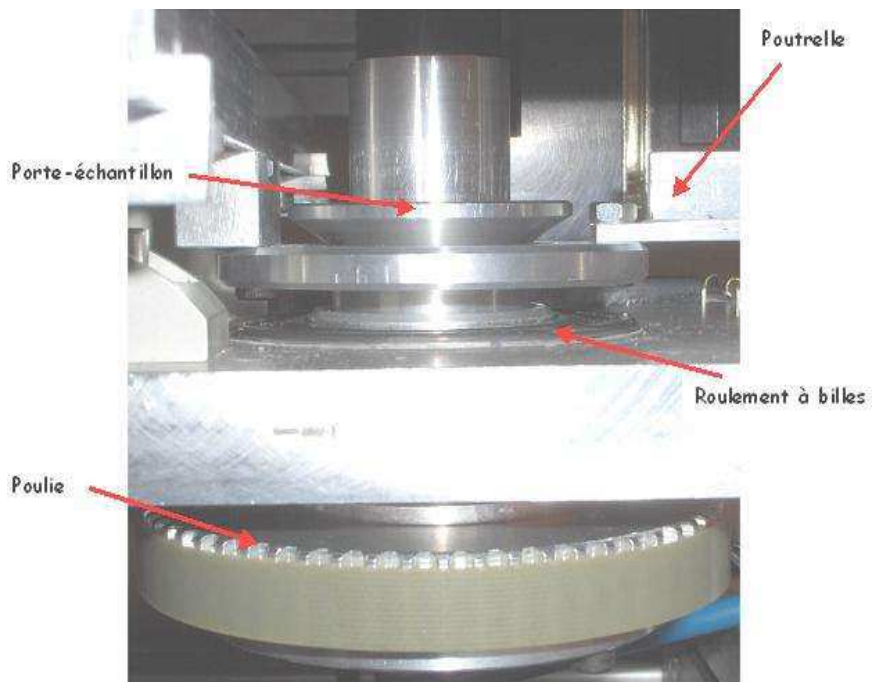
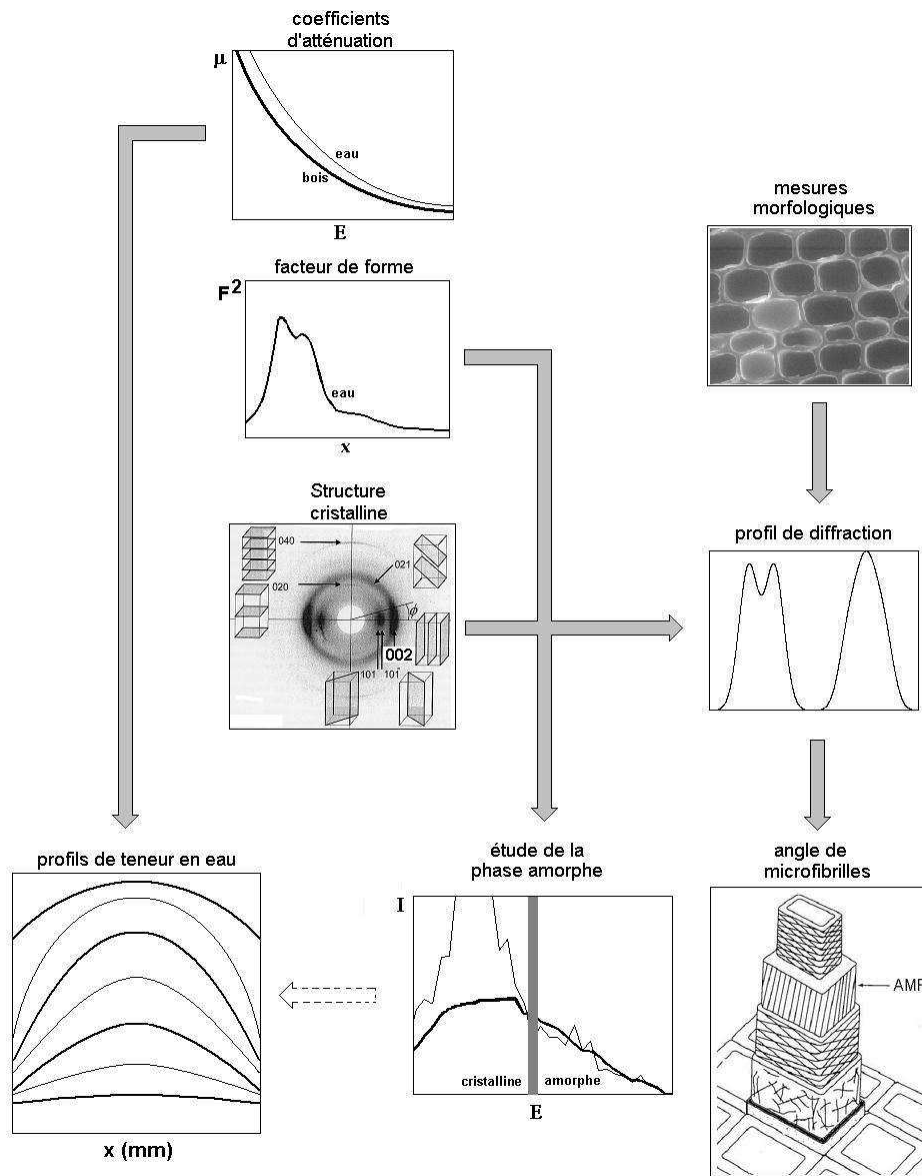


Figure 25. Détails de la zone du porte-échantillon.

Conclusion générale

Nous avons présenté un travail exploratoire sur l'applicabilité de différentes techniques de rayons X pour la détermination non-destructive de la teneur en eau et de l'angle de microfibrilles du bois. Notre démarche peut être résumé par le schéma représenté sur la figure ci-dessous.



Nous avons déterminé les profils de teneur en eau dans des planches du bois pendant leur séchage en utilisant des coefficients d'atténuation de l'eau et de la matière ligneuse. Pour cela, il a été nécessaire de mettre en place un dispositif de cartographie non-destructive par atténuation d'un rayonnement poly-énergétique. Nous avons couplé ce dispositif à la cellule de séchage expérimentale multi-fonction du LERMaB qui est capable d'atteint une large gamme de conditions de séchage.

Ce dispositif s'avère très utile pour le futur travail du LERMaB. En effet, un couplage des profils d'humidité expérimentaux au modèle TransPore permet de obtenir des informations précieuses sur les transferts de masse dans des planches du bois au cours du séchage.

Un autre résultat matériel de notre travail a été le dispositif de rayons X permettant réaliser des expériences de diffraction et/ou d'atténuation dans des échantillons du bois. L'originalité du dispositif est qu'il permet de réaliser des expériences de diffraction avec suivi de la teneur en eau.

Comme conséquence des expériences décrites au quatrième chapitre, la méthode de identification simultanée de la teneur en eau et la densité du bois par calcul rigoureux d'atténuations ne semble pas constituer une voie utile pour déterminer la teneur en eau du bois. Au moins avec la technologie de détection du rayonnement dont nous nous disposons. Or, si bien la méthode se soldé par un échec, nous pouvons souligner la création d'un modèle stochastique permettant d'optimiser l'utilisation spectres poly-énergétiques. Ce modèle pourra être exploité pour identifier les phases de couples différents au couple bois-eau.

Malheureusement les capteurs spectrométriques utilisés n'ont pas été capables de fournir des spectres suffisamment précises dans le but de réaliser des mesures quantitatives fiables.

En ce qui concerne la phase cristalline du bois, nous avons développé un modèle de prédiction de la forme des profils de diffraction du plan cristallin (002). Des simulations pouvant être tirées à partir de la morphologie réelle des cellules obtenues ou de modèles géométriques de base. Ce modèle présente des résultats prometteurs. Un travail futur devrait améliorer la représentativité de la mesure de l'orientation des parois: par exemple, l'utilisation d'un champ microscopique plus large. De plus, une méthode de détection de contours des parois par traitements d'images peut être plus efficace que le maillage. D'autre part, il reste possible d'optimiser certaines conditions de mesure telles que la relation taille du collimateur/temps d'acquisition.

De même, le rayonnement diffusé par l'eau et le bruit de fond généré par la diffusion de la phase amorphe peuvent être prometteurs pour des futurs travaux sur la détermination de la teneur ou de la densité dans des matériaux à base de bois mais plus standardisés :

- Un champ d'application préférentiel de la diffusion de l'eau est la fabrication de la pâte à papier car elle constitue un matériau homogène en densité où la mesure des teneur en eau de plusieurs centaines peut être très utile.
- Le champ d'application préférentiel de la diffusion générée par la phase amorphe est la fabrication de panneaux à base du bois. En effet, l'homogénéité de la teneur en eau et l'impossibilité de réaliser un balayage transversal pour mesurer le profil de densité dans l'épaisseur, révèlent la diffusion cohérente de rayons X comme une méthode très adaptée.

Pour résoudre la difficulté de détermination simultanée de la densité anhydre et de la teneur en eau du bois massif, un couplage de la méthode par diffusion avec la méthode par atténuations peut être envisagé. Un travail futur dans le sujet devra explorer ce chemin.

Nomenclature

A :	masse atomique,
c :	célérité de la lumière,
$F^2(x,Z), F^2$:	facteur de forme,
h :	constante de Planck ($1,602 \times 10^{-19}$ Joules),
N_a :	nombre d'Avogadro ($6,022 \times 10^{23}$),
r_o :	rayon classique des électrons ($2,81179 \times 10^{-15}$ mètres),
RSB :	rapport signal bruit,
S :	écart type
$S(x,Z)$:	fonction de diffusion incohérente,
t :	masse surfacique,
TH :	teneur en eau,
x :	momentum transfer,
\bar{X} :	moyenne,
Z :	numéro atomique,
Z_{eff} :	numéro atomique effectif,
ρ :	densité ou masse volumique,
λ :	longueur d'onde ou parcours libre moyen (m),
ν :	fréquence d'oscillation (Hz),
μ :	coefficient d'atténuation linéaire ou massique ou angle de microfibrilles,
ϕ :	angle azimutal,
η^a :	densité atomique,
η^e :	densité électronique,
σ :	section efficace ou écart type
Ω :	angle solide (stereoradians),

Bibliographie

Aguilera, C., Ramos, M. et Salinas, D. (2002). Visualización interna de nudos en rollizos de madera de *Pinus radiata* D. Don utilizando rayos X. *Maderas: Ciencia y Tecnología* 4(2): 193-200.

Amptek (2005). XR-100CR X-ray detector. [Online] Available: <http://www.amptek.com/xr100cr.html>. I. Amptek. Bedford, MA, USA. 2005.

Andersson, S., Serimaa, R., Paakkari, T., Sarampää, P. et Pesonen, E. (2003). Crystallinity of wood and the size of cellulose crystallites in Norway spruce (*Picea abies*). *Journal of Wood Science*(49): 531-537.

Andersson, S., Serimaa, R., Torkkeli, M., Paakkari, T. et Sarampää, E. (2000). Microfibril angle of Norway spruce (*Picea abies* (L.) Karst) compression wood: comparison of measuring techniques. *Journal of Wood Science* 46: 343-349.

Badel, E. (1999). Détermination des propriétés élastiques et du retrait d'un cerne annuel de chêne dans le plan transverse: Description de la morphologie, mesures des propriétés microscopiques et calculs d'homogénéisation. Thèse ENGREF. Nancy.

Baillères, H., Davrieux, F. et Ham-Pichavant, F. (2002). Near infrared analysis as a tool for rapid screening of some major wood characteristics in a eucalytus breeding program. *Annals of Forest Science*(59): 479-490.

Bauters, T. W. J., DiCarlo, D. A. et Steenhuis, T. S. (2000). Rapid, quantitative tracking of fluid flow in soils with synchrotron x-rays. *chess newsletter*.

Bentz, D. et Hansen, K. (2000). Preliminary observations of water movement in cement pastes during curing using x-ray absorption. *Cement and concrete research* 30(7): 1157-1168.

Bouet, J.-P. et Humbert, J.-L. (2003). Le bois; une énergie renouvelable. [Online] Available: <http://crdp.ac-reims.fr/cddp10/ressources/mediatheque/dossiers/themadoc/default.htm>. ThemaDocs. SCEREN Services Culture Editions Ressources pour l'Education Nationale. 2005.

Bucki, M. (2004). Etude expérimentale et simulation numérique d'un procédé de séchage couplé vide et hautes fréquences: Application au bois de chêne. Thèse ENGREF. Nancy.

Bucur, V. (2003). Techniques for high resolution imaging of wood structure: a review. *Measurement Science and Technology*(14): 91-98.

Cardoso, J. M., Simoes, J. B., Menezes, T. et Correia, C. M. B. A. (2001). CdZnTe spectra improvement through digital pulse amplitude correction using the linear sliding method.

Carll, C. et Ten Wolde, A. (1996). Accuracy of wood resistance sensors for measurement of humidity. *Journal of Testing and Evaluation* 24(3): 154-160.

Carlsson, C. A. et Carlsson, G. A. (1996). Basic physics of X-ray imaging. Report LiH-RAD-R-008. Department of Radiation Physics - Faculty of Health Sciences, Linköping University, Sweden.

Cave, I. et Robinson, W. (1997). Measuring microfibril angle distribution in the cell wall by means of x-ray diffraction. Microfibril angle in wood. B. G. Butterfield. Westport, New Zealand: 94-107.

Cave, I. D. (1997a). Theory of x-ray measurement of microfibril angle in wood. Part 1. The condition for reflection. X-ray diffraction by materials with fibre type symmetry. Wood Science and Technology(31): 143-152.

Cave, I. D. (1997b). Theory of X-ray measurement of microfibril angle in wood. Part 2: The diffraction diagram X-ray diffraction by materials with fibre type symmetry. Wood Science and Technology 31(4): 225-234.

Chang, S. J. (1992). External and internal defect detection to optimize cutting of hardwood logs and lumber, U.S. Department of Agriculture.

Chang, S. J., Olson, J. R. et Wang, P. C. (1989). NMR imaging of internal features in wood. Forest Products Journal 6(39): 43-49.

Choffel, D. (1995). Classement automatique des bois de structure par capteurs micro-ondes. Thèse de doctorat. Université Henri Poincaré. Nancy.

Clarijs, M. C., Bom, V. R., Kolar, Z. I., van Eijk, C. W. E., Frieling, J., Scheers, A. et Reimerink, A. (1999). Optimized x-ray spectra for multiphase-flow measurements. Computerized Tomography for industrial applications and image processing in radiology, Berlin, Germany.

Cown, D. J. et Clement, B. C. (1983). A wood densitometer using direct scanning with x-rays. Wood Science and Technology(17): 91-99.

Dai, G. et Ahmet, K. (2001). Long-term monitoring of timber moisture content below the fiber saturation point using wood resistance sensors. Forest Products Journal 5(51): 52-58.

Davis, J. R. (1993). Moisture content in drying wood using direct scanning gamma-ray densitometry. Wood and Fiber Science 25(2): 153-162.

Dinten, J. M., Robert-Coutant, C. et Darboux, M. (2001). Dual-energy x-ray absorptiometry using a 2D digital radiography detector. Application to bone densitometry. Proceeding of SPIE.

Divos, F., Szegedi, S. et Raics, P. (1996). Local densitometry of wood by gamma back-scattering. Holz Roh-Werkstoff 54: 279-281.

Donalson, L. A. (1991). The use of pit apertures as windows to measure microfibril angle in chemical pulp fibers. Wood and Fiber Science 23(2): 291-295.

- Duvauchelle, P., Peix, G. et Babot, D. (1999). Effective atomic number in the Raleigh to Compton scattering ratio. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 155: 221-228.
- Evans, R., Stuart, S. et Van der Touw, J. (1996). Microfibril angle scanning of increment cores by x-ray diffractometry. *Appita Journal* 49(6): 411-414.
- Evans, R. (1997). Rapid scanning of microfibril angle in increment cores by x-ray diffractometry. *Microfibril angle in wood*. B. G. Butterfield. Westport, New Zealand: 116-139.
- Evans, R. (1999). A variance approach to the x-ray diffractometric estimation of microfibril angle in wood. *Appita Journal* 52(4): 283-294.
- Evans, R., Hughes, M. et Menz, D. (1999). Microfibril angle variation by scanning X-ray diffractometry. *Appita Journal* 52(5): 363-637.
- Evans, R. (2002a). Art, Science and Informatics - Visualisation of large, complex data sets in high-speed measurement of the microstructure of wood. The Burgess-Lane Memorial Lectureship in Forestry, The University of British Columbia. Vancouver - Canada.
- Evans, J. P. O. (2002b). Stereoscopic imaging using folded linear dual-energy x-ray detectors. *Measurement Science and Technology* 13: 1388-1397.
- Fung, K. et Gilboy, W. (2000). "Anode heel effect" on patient dose in lumbar spine radiography. *The British Journal of Radiology* 73(869): 531-536.
- Grecon (2005). Stenograph on-line raw density analyser. [Online] Available: http://www.grecon-us.com/html/raw_density1.htm. I. Grecon Inc.
- Hansen, C. P. (2000). Application of the pilodyn in forest tree improvement. DFSC Series of Technical Notes. TN55. Humlebaek, Denmark, Danida Forest Seed Centre.
- Hansen, K., Genward, L. et Singh, K. (1999). Dual-energy absorptiometry for the simultaneous determination of density and moisture content in porous structural materials. *Proceeding of the 5th symposium on Building Physics - Gotenburg*.
- Healy, W. (2003). Moisture sensor technology - A summary of techniques for measuring moisture levels in building envelopes. *ASHRAE Transactions* 109(1): 232-242.
- Heger, L., Parker, M. L. et Kennedy, R. W. (1974). X-ray densitometry: A technique and an example of application. *Wood Science* 7(2): 140-148.
- Higuchi, T. (1997). *Biochemistry and molecular biology of wood*.
- Hoag, M. et McKimmy, M. D. (1988). Direct scanning x-ray densitometry of thin wood sections. *Forest Products Journal* 1(38): 23-26.
- Hori, R., Müller, M., Watanabe, U., Lichtenegger, H. C., Fratzl, P. et Sugiyama, J. (2002). The importance of seasonal differences in the cellulose microfibril angle in softwoods in determining acoustic properties. *Journal of Material Science*(37): 4279-4284.

- Hu, J. et Stroeven, P. (2003). X-ray absorption study of drying cement paste and mortar. *Cement and Concrete Research* 33: 397-403.
- Huang, C. L., Kutscha, N. P., Leaf, G. J. et Megraw, R. A. (1997). Comparison of microfibril angle measurement techniques. *Microfibril angle in wood*. B. G. Butterfield. Westport, New Zealand: 177-205.
- Hubbell, J. H. et Seltzer, S. M. (2004). Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients (version 1.4). [Online] Available: <http://physics.nist.gov/xaamdi>. Gaithersburg, MD., National Institute of Standards and Technology. 2005.
- James, W. L., Yen, Y. et King, R. J. (1985). A microwave method for measuring moisture content, density, and grain angle of wood. Research Note FPL-0250, Forest Products Laboratory.
- Johansson, J., Hagman, O. et Fjellner, A. (2003). Predicting moisture content and density distribution of Scots pine by microwave scanning of sawn timber. *Journal of Wood Science* (49): 312-316.
- Johns, P., Wismayer, M. et Leclair, R. (2002). The need for cross section data for medical x-ray scatter imaging. 5th Annual canadian light source users meeting, Saskatoon. Canada.
- Keller, R. (1994). Chapitre 1. La constitution du bois. *Le bois matériau d'ingénierie*. Nancy, ARBOLOR: 14-52.
- Key, M. J. (1999). Gas microstructure x-ray detectors and tomographic multiphase flow measurement. Scholl of Physical Sciences. Surrey, Univesity of Surrey.
- Kirz, J. (2001). Scattering of X-rays from electrons and atoms. X-ray Data Booklet. Berkeley, Ca., Center of X-ray Optics and Advanced Light Source.
- Kouchadé, A. (2004). Détermination en routine de la diffusivité massique dans le bois par la méthode inverse à partir de la mesure électrique en régime transitoire. Thèse ENGREF. Nancy.
- Kretschmann, D. E., Alden, H. A. et Verrill, S. P. (1997). Variations of microfibril angle in loblolly pine: comparison of iodine crystallization and x-ray diffraction techniques. *Microfibril angle in wood*. B. G. Butterfield. Westport, New Zealand: 157-176.
- Laskey, M. A. et Phil, D. (1996). Dual-energy X-ray absorptiometry and body composition. *Nutrition*(12): 45-51.
- Leelavanichkul, S. et Cherkaev, A. (2005). Why grain in tree's trunks spirals: mechanical perspective. *International Journal of Structural Optimization* (en presse).
- Leney, L. (1981). A technique for measuring fibril angle using polarized light. *Wood and Fiber Science* 13: 13-16.

Létang, J. M., Freud, N. et Peix, G. (2003). Optimal calibration via virtual x-ray imaging for dual-energy techniques: application to glass wool. Proceedings of SPIE - Sixth International Conference on Quality Control by Artificial Vision.

Lichtenegger, H., Muller, M., Paris, O., Rieckel et Fratzl, P. (1999). Imaging of the helical arrangement of cellulose fibrils in wood by synchrotron x-ray microdiffraction. *Journal of Applied Crystallography* 32: 1127-1133.

Lichtenegger, H. C. (1999). Variation of cellulose microfibril angles in softwoods and hardwoods - A possible strategy of mechanical optimisation. *Journal of Structural Biology* 128: 257-269.

Lichtenegger, H. C., Müller, M., Wimmer, R. et Fratzl, P. (2003). Microfibril angles inside and outside crossfields of Norway spruce tracheids. *Holzforschung*(57): 13-20.

Liftig, R. (1985). Shop-built moisture meter. *Fine Woodworking*. July/August : 49-51.

Lindeberg, J. (2004). X-ray based tree ring analyses. Department of Silviculture. Umea, Swedish University of Agricultural Sciences: 25.

Lindgren, L. O. (1991). Medical CAT-scanning: x-ray absorption coefficients, CT-number and their relation to wood density. *Wood and Science Technology* 25: 341-349.

Lindgren, O. (1992). Non-destructive wood density distribution measurements using computed tomography. *Holz als Roh-und Werkstoff* 50: 295-299.

Lister, P. F. (2004). Application of X-ray computed tomography in the wood products industry.

Liu, C. J., Olson, J. R., Tian, Y. et Shen, Q. (1988). Theoretical wood densitometry: I. Mass attenuation equations and wood density models. *Wood and Fiber Science* 20(1): 22-34.

Longuetaud, F. (2004). Analyse non-destructive de caractéristiques internes de billons d'épicéa commun (*Picea abies*) par imagerie 3D à rayons X. 6ème Colloque Sciences et Industrie du Bois, ENSTIB, Epinal, France.

Macedo, A., Vaz, C. M. P., Pereira, J. C. D., Naime, J. M., Cruvinel, P. E. et Crestana, S. (2002). Wood density determination by x- and gamma-ray tomography. *Holzforschung* 56: 535-540.

Magalhaes, S. D, Eichler, J., et Gonçalves, O. (1995). Calculation on x-ray scattering of 17.4 keV radiation and image degradation mammography. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 95: 87-90.

Martinis, R., Socco, L. V., Sambuelli, L., Nicolotti, G., Schmitt, O. et Bucur, V. (2004). Tomographie ultrasonore pour les arbres sur pied. *Annals of Forest Science*(61): 157-162.

McBride, J. F. et Miller, C. T. (1994). Nondestructive measurements of phase fractions in multiphase porous-media experiments by using x-ray attenuation. *Center for multiphase research news University of north carolina*. 1: 1-5.

Miyajima, S. et Imagawa, K. (2002). CdZnTe detector in mammographic x-ray spectroscopy. *Phys. Med. Biol.*(47): 3959-3972.

Miyajima, S., Sakuragi, H. et Matsumoto, M. (2002). Extraction of mean free path of charge carriers in CdZnTe crystals from measured full-energy peaks. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*(485): 533-538.

Morales, S., Guesalaga, A., Fernandez, P., Guarini, M. et Irrarazaval, P. (2004). Computer reconstruction of pine growth rings using MRI. *Magnetic Resonance Imaging*(22): 403-412.

Moschler, W. W. et Dougal, E. F. (1988). Calibration procedure for direct scanning densitometer using gamma radiation. *Wood and Fiber Science* 3(20): 297-303.

Newman, R. (1997). How stiff is an individual cellulose microfibril? Microfibril angle in wood. B. G. Butterfield. Westport, New Zealand: 81-93.

Niemelä, A. (1995). Low-noise electronics for high-resolution CdZnTe and CdTe X-ray detection systems. *Rayons X et matière. 100 ans déjà. Journal de Physique IV, Strasbourg, Les Editions de Physique.*

Niemz, P., Kucera, L. J., Ridder, H. W., Habermehl, A. et Flisch, A. (1998). Durschblick mit Computertomographie. *Wald und Holz*: 7-10.

Norel, G. (1965). Etude des milieux poreux par absorption d'un rayonnement X ou gamma émis par une source radioactive. *Faculté des Sciences. Paris, Université de Paris*: 116.

Oja, J., Grundberg, S., Fredriksson, J. et Berg, P. (2004). Automatic grading of sawlogs: A comparison between X-ray scanning, optical three-dimensional scanning and combinations of two methods. *Scandinavian Journal of Forest Research*(19): 89-95.

Olson, J. R., Arganbright, D. G. et Prussin, S. G. (1982). Use of an error analysis for evaluation of a dual-energy gamma radiation method for wood moisture content. *Wood Science* 15(1): 1-13.

Ostrom, M. et Dave, J. H. (1990). Calibration and automation of a dual-energy gamma system for applications in soil science. *Agronomy and soils departmental series report N-145 Auburn University – Auburn.*

Pang, S. et Wiberg, P. (1998). Model predicted and CT scanned moisture distribution in a *Pinus radiata* board during drying. *Holz als Roh-Werstoff* 56(1): 9-14.

Papp, T. et Campbell, J. L. (2001). Size and origin of the escape peak in various Si(Li) detectors. *x-ray spectrometry* 30: 77-82.

Perré, P. et Turner, I. (1996). Using a set of macroscopic equations to simulate heat and mass transfer in porous media: some possibilities illustrated by a wide range of configurations that emphasize the role of internal pressure. *Numerical methods and mathematical modelling of the dryinf process.*

Perré, P. et Thiercelin, F. (1997). Détermination de profils d'humidité dans le bois par détection directe de rayons-X: validation de la méthode. Les cahiers scientifiques du bois. Volume 1. Instrumentation. Nancy, ARBOLOR.

Perré, P. (2004). MeshPore: A software able to apply image-based meshing techniques to anisotropic and heterogeneous porous media. Drying 2004. Proceeding of the 14th International Drying Symposium., Sao Paulo, Brazil.

Perré, P. et Thiercelin, F. (2004). Evidence of dual scale porous mechanism during fluid migration in hardwood species. (I) Using the attenuation of a polychromatic X-ray beam to determine the evolution of moisture content during imbibition of beech. Chinese Journal of Chemical Engineering 12(6): 773-782.

Peyret, O., Mestais, C. et Verger, L. (1999). Vers les gamma-caméras à semi-conducteurs. Revue de l'ACOMEN 5(2): 129-136.

Poletti, M. E., Gonçalves, O. D. et Mazzaro, I. (2002). X-ray scattering from human breast tissues and breast-equivalent materials. Physics in Medicine and Biology 47: 47-63.

Poletti, M. E., Gonçalves, O. D. et Mazzaro, I. (2004). Measurements of X-ray scatter signatures for some tissue-equivalent materials. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 213: 595-598.

Polge, H. (1966). Etablissement des courbes de variation de la densité du bois par exploration densitométrique des radiographies d'échantillons prélevés à la tarière sur des arbres vivants. Extrait des Annales des Sciences Forestières. Tome XXIII. Fascicule 1.

Ponpon, J. et Siffert, P. (1995). Détecteurs de rayons X à semi-conducteurs. Evolutions récentes. Rayons X et matière. 100 ans déjà. Journal of Physique IV, Strasbourg, Les Editions de Physique.

Press, W., Teukolsky, S., Vetterling, W. et Flannery, B. (1992). Numerical recipes in FORTRAN. The art of the scientific computing, Cambridge University Press.

Prud'homme, R. E. et Noah, J. (1975). Détermination of fibril angle distribution in wood fiber: a comparison between the X-ray diffraction and the polarized microscope methods. Wood and Fiber Science 6: 282-289.

Redus, B. (2003). Charge trapping in XR-100T-CdTe and -CZT detectors. Application Note ANCZT-2 Rev. 2. [Online] Available: <http://www.amptek.com>, Amptek, Inc. 2003.

Reiterer, A., Lichtenegger, H. C., Stanzl-Tschegg, S. E. et Fratzl, P. (1999). Experimental evidence for mechanical function of the cellulose microfibril angle in wood cell walls. Philosophical Magazine A 79(9): 2173-2184.

Rémond, R. (2004). Approche déterministe du séchage des avivés de résineux des fortes épaisseurs pour proposer des conduites industrielles adaptées. ENGREF. Nancy: 219.

- Rémond, R., Mougél, E. et Perré, P. (2005). The existence of a thin dry layer during convective drying as a possible explanation of the evolution of thickness, temperature and moisture content of Norway Spruce boards. *Drying Technology* 23(1-2): 249-271.
- Rinnhofer, A., Petutschnigg, A. et Andreu, J-P. (2003). Internal log scanning for optimizing breakdown. *Computers and electronics in agriculture* 41: 7-21.
- Risinger, M. (2004). Neutron moisture meters. [Online] Available: <http://sanangelo.tamu.edu/agronomy/sorghum/neutron.htm>, San Angelo Research and Extension Center. Texas A&M University System. 2004.
- Rosenberg, E., Schatvet, J. et Hoydal, K. (2001). In-kiln measurements of moisture content in timber at Moelven Valer AS. Workshop on Wood Drying. European Cost E15, Helsinki.
- Rosenkilde, A. et Glover, P. (2002). High resolution measurement of the surface layer moisture content during drying of wood using a novel magnetic resonance imaging technique. *Holzforschung* 56: 312-317.
- Sahin, H. et Ay, N. (2004). Dielectric properties of hardwood species at microwave frequencies. *Journal of Wood Science*(50): 375-380.
- Sahlberg, U., Salmén, L. et Oscarsson, A. (1997). The fibrillar orientation in the S2-layer of wood fibres as determined by X-ray diffraction analysis. *Wood Science and Technology*(31): 77-86.
- Sarén, M., Serimaa, R., Andersson, S., Paakkari, T., Sarampää, P. et Pesonen, E. (2001). Structural variation of tracheids in Norway spruce (*Picea abies* [L.] Karst.). *Journal of Structural Biology*(136): 101-109.
- Schad, K. C., Schmoltdt, D. et Ross, R. J. (1996). Nondestructive methods for detecting defects in softwood logs. Research paper FPL-RP-546, Forest Products Laboratory.
- Schena, G., Chiaruttini, C., Dreossi, D., Olivo, A. et Pani, S. (2002). Grade of fine composite mineral particles by dual-energy X-ray radiography. *International Journal of Mineral Processing* 67: 101-122.
- Schmoltdt, D., He, J. et Abbott, A. L. (1998). A comparison of several artificial neural network classifiers for CT images of hardwood logs.
- Schmoltdt, D. L. (1996). CT imaging, data reduction, and visualization of hardwood logs. *Hardwood Symposium*.
- Sepúlveda, P. (2001). Measurement of spiral grain with computed tomography. *Journal of Wood Science*(47): 289-293.
- Sepúlveda, P., Kline, D. E. et Oja, J. (2003). Prediction of fiber orientation in Norway spruce logs using an X-ray logs scanner: a preliminary study. *Wood and Fiber Science* 35(3): 421-428.
- Shi, X. (2000). Improving object classification in X-ray luggage inspection. Blacksburg, Virginia., State University of Virginia: 212.

Siau, J. (1984). Transport process in wood. Berlin, Springer-Verlag.

Steiner, P. R., Jozsa, L. A., Parker, M. L. et Chow, S. (1978). Application of x-ray densitometry to determine density profile in waferboard: relationship of density to thickness expansion and internal bond strength under various cycles. *Wood Science* 11(1): 48-55.

Tartari, A., Taibi, A., Bonifazzi, C. et Baraldi, C. (2002). Updating of form factor tabulations for coherent scattering of photons in tissues. *Physics in Medicine and Biology* 47: 163-175.

Verrill, S. P., Kretschmann, D. E. et Herian, V. L. (2001). JMFA - A graphically interactive java program that fits microfibril angle x-ray diffraction data. USDA Forest Service Forest Products Laboratory Research Note #283. Madison, Wisconsin.

Vion-Dury, J. (2002). Cours de résonance magnétique: spectrométrie et imagerie. Ed. Ellipses.

Walker, N. et Dodd, R. (1988). Calculation of wood density variation from x-ray densitometer data. *Wood and Fiber Science* 1(20): 35-43.

Wang, X., Divos, F., Pilon, C., Brashaw, B. K., Ross, R. J. et Pellerin, R. F. (2004). Assessment of decay in standing timber using stress wave timing nondestructive evaluation tools. A guide for use and interpretation. General Technical Report FPL-GTR-147. Forest Products Laboratory. Madison, Wisconsin

Wiberg, P. et Morén, T. J. (1999). Moisture flux determination in wood during drying above fibre saturation point using CT-scanning and digital image processing. *Holz als Roh- und Werkstoff* 57(137-144).

EXPLOITATION D'UN RAYONNEMENT X POLY-ENERGETIQUE POUR LA DETERMINATION DE LA TENEUR EN EAU ET DE L'ANGLE DE MICROFIBRILLES DU BOIS : APPROCHE THEORIQUE ET EXPERIMENTALE

Résumé

Mesurer la teneur en eau et l'angle des microfibrilles est un enjeu important pour les sciences du bois car ces deux paramètres influencent fortement le comportement macroscopique du bois. Par exemple, le retrait, les propriétés mécaniques, la conductivité thermique et acoustique... sont dépendants de la teneur en eau et leur caractère anisotrope est en grande partie régi par l'angle des microfibrilles.

L'objectif cette thèse est l'utilisation d'un rayonnement X avec un spectre poly-énergétique, pour mesurer sans contact la teneur en eau et l'angle de microfibrilles du bois. Nous avons exploité la légère différence entre le coefficient d'atténuation des rayons X pour l'eau et pour le bois dans des essais de transmission. Malheureusement, les résultats montrent que cette différence entre les coefficients d'atténuation est insuffisante pour permettre la mesure précise de la teneur en eau. En revanche, malgré la proximité de ces coefficients d'atténuation, des essais de diffusion cohérente du rayonnement montrent des effets sensibles. Ainsi, en utilisant un faisceau X poly-énergétique et un système de mesure spectrométrique du rayonnement transmis et diffusé, nous avons pu discriminer le composant cristallin (cellulose du bois) du composant amorphe (eau) dans un échantillon du bois humide car pour un angle donné ces phases diffractent à des énergies différentes. Par ailleurs, le dispositif créé spécialement nous a permis d'étudier la phase cristalline du bois. Nous avons pu confronter des profils de diffraction expérimentaux avec des profils de diffraction théoriques, obtenus au moyen d'une simulation rigoureuse, dans l'objectif d'estimer l'angle moyen de microfibrilles et son écart type.

Mots clés: bois, atténuation de rayons X, diffraction de rayons X, teneur en eau, angle de microfibrilles, structure cristalline, structure amorphe, méthode inverse, méthode Monte-Carlo, détecteur spectrométrique, évaluation non destructive.

NON-DESTRUCTIVE DETERMINATION OF MOISTURE CONTENT AND MICROFIBRIL ANGLE OF WOOD USING A POLY-CHROMATIC X-RAY BEAM. THEORETICAL AND EXPERIMENTAL APPROACH.

Abstract

Non-destructive determination of moisture content and microfibril angle are important stakes for the sciences of the wood because these two parameters influence strongly the macroscopic behavior of the wood. For example, the shrinkage, the mechanical properties, the thermal and acoustic conductivity are dependent on the moisture content and their anisotropic character is largely governed by the microfibril angle.

We used the light difference between X-ray mass attenuation coefficient for the water and for the wood in transmission. Regrettably, the results show that this difference between X-ray mass attenuation coefficient is insufficient to allow the precise measure of the moisture content. In spite of this, the coherent scattering shows sensitive effects. So, by using a poly-energetic beam and a spectrometric system, we were able to discriminate between the crystalline constituent (cellulose) of the amorphous constituent (water) in a sample of wet wood, because for a given angle these phases scatter in different energy. Besides, the device created allowed us to study the crystalline phase of the wood. We were able to confront experimental profiles of diffraction with theoretical profiles of diffraction, obtained by means of a rigorous simulation, in the objective to estimate the average microfibril angle and its standard deviation.

Keywords: wood, X-ray attenuation, X-ray scattering, moisture content, microfibril angle, crystalline structure, amorphous structure, inverse method, Monte-Carlo method, spectrometric detector, non-destructive testing.