

## Une approche innovante pour l'étude des transferts couplés d'eau et d'oxygène dans le bois de chêne de tonnellerie

COLIN Julien<sup>1</sup>, ROUSSEY Claire<sup>1,2</sup>, TOUNSI Mohamed Amine<sup>1,2</sup>, TEISSIER DU CROS Rémi<sup>2</sup>, LITOUX-DESRUES François<sup>2</sup>, CASALINHO Joel<sup>1</sup> et PERRÉ Patrick<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Université Paris-Saclay, CentraleSupélec, Laboratoire de Génie des Procédés et Matériaux, Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>Département R&D, Chêne & Cie, Merpins, France

[julien.colin@centralesupelec.fr](mailto:julien.colin@centralesupelec.fr)

**Mots clefs :** barrique, élevage des vins, diffusion massique, imagerie à rayons X, méthode de la face arrière, modélisation numérique, loi de mélange.

### Introduction

Lors de l'élevage, une oxydation ménagée des composés du vin modifie sa composition et sa qualité. Ce processus entretient une faible pression partielle d'oxygène ( $O_2$ ) dans le vin et donc un gradient de concentration de cette espèce dans l'épaisseur des douelles. Il en résulte un passage lent et continu d' $O_2$  du milieu extérieur, le chai, vers l'intérieur de la barrique, notamment par diffusion (Nevares et del Alamo-Sanza, 2018). De précédents travaux ont porté sur la diffusion d' $O_2$  dans le bois sec à l'air. Ils ont permis de mieux comprendre les modalités de transfert, et notamment de démontrer que l' $O_2$  ne diffuse pas à travers les parois cellulaires, mais uniquement dans la porosité ouverte du bois (Roussey et *al.*, 2021). Cependant, l'état hydrique du bois tout au long de cette expérience était éloigné des conditions réelles. La présence de liquide dans les lumens des cellules du bois, par imprégnation du vin, limite considérablement la cinétique de diffusion de l' $O_2$ . En effet, le rapport entre le coefficient de diffusion de l' $O_2$  dans l'air et dans l'eau (composé majoritaire du vin) est d'ordre 4. Ainsi, la dynamique d'imprégnation a été précédemment étudiée par imagerie à rayons X (Roussey et *al.*, 2018). Les transferts de liquide et d' $O_2$  avaient donc été jusqu'ici abordés de manière découplée, par des méthodes complémentaires.

Afin d'approcher les conditions en chai, les travaux présentés dans ce papier visent à mieux comprendre la dynamique de transfert d' $O_2$  dans le bois de chêne en présence de liquide.

### Matériels et méthodes

Un nouveau dispositif expérimental est conçu et fabriqué (Fig. 1). Il conjugue les méthodes précédemment évoquées.

#### *Préparation de l'échantillon*

Les échantillons de chêne ont été usinés dans des merrains préalablement stockés sur parc à la tonnellerie Taransaud pendant 24 mois. Pour éviter les fuites latérales de liquide et de gaz entre l'échantillon et le support la géométrie retenue est cylindrique (36 mm de diamètre, et 15 mm d'épaisseur). Dans une barrique, l'épaisseur des douelles coïncide avec la direction tangentielle du bois. Afin d'étudier les transferts dans cette seule direction, les transferts latéraux ont été annulés. Pour ce faire, de la résine époxy est appliquée sur la face latérale des échantillons.

Avant le début de l'expérimentation, les échantillons ont été placés dans une enceinte climatique régulée à une température de 24 °C et à une humidité relative de 72 % jusqu'à stabilisation de leur masse, afin de maîtriser leur champ spatial de teneur en eau (MC) initiale. MC est alors considérée comme uniforme dans l'échantillon, proche de 10 %.

*Mesure des concentrations en O<sub>2</sub> et détermination du coefficient de diffusion*

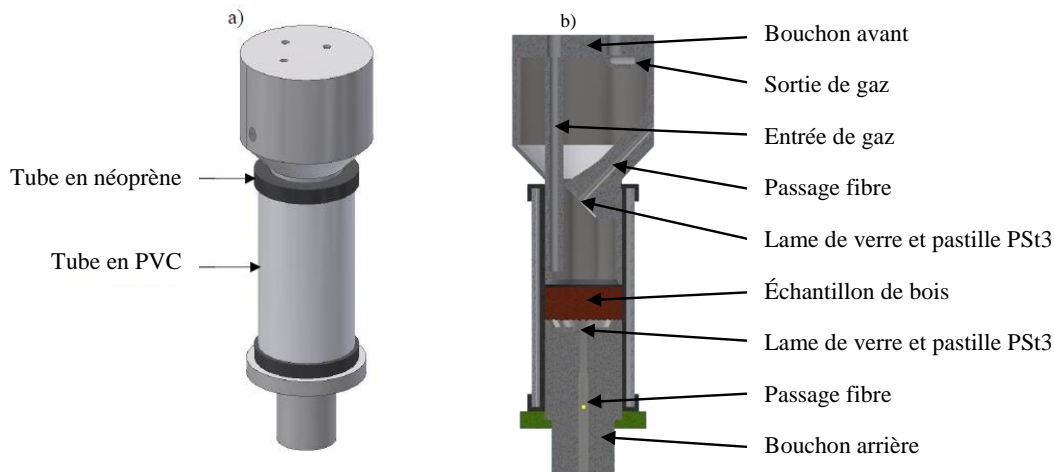


Fig. 1 : a) Support échantillon. b) Coupe axiale

Le principe d'étude de la diffusion de l'O<sub>2</sub> consiste à soumettre la face avant de l'échantillon à un créneau de concentration d'O<sub>2</sub>, et à mesurer l'évolution de cette concentration en face arrière (Perré et al., 2015). Un bouchon étanche en PVC est placé au niveau de la face arrière de l'échantillon, dans lequel est collé un capteur d'O<sub>2</sub> (pastille PSt3, PreSens) sur une lame en verre scellée de manière étanche. La pastille est interrogée par fibre optique (Fibox 4 de PreSens) sans perturber la concentration d'O<sub>2</sub>. En face avant, un deuxième bouchon, fabriqué par impression 3D, peut contenir 64,5 mL de liquide. Une consigne en concentration d'O<sub>2</sub> est imposée dans le fluide (gaz ou liquide), par balayage d'azote (N<sub>2</sub>) ou d'air. Une pastille PSt3 est également placée dans ce bouchon. L'échantillon et les bouchons sont maintenus en contact et alignés par un tube souple en néoprène fixée dans un tube rigide en PVC.

Le coefficient de diffusion d'O<sub>2</sub> dans le bois est ensuite déterminé par méthode inverse, en minimisant l'écart entre l'évolution expérimentale de O<sub>2</sub> en face arrière et celle prédite par simulation numérique. Le modèle suppose un champ initial de concentration d'O<sub>2</sub> uniforme et impose des conditions de Dirichlet sur les faces de l'échantillon. La diffusion d'O<sub>2</sub> dans le bois est formulée par une loi de Fick. Le bilan en face arrière intègre d'éventuelles fuites quantifiées par un test blanc.

*Détermination de MC et impact sur le modèle de diffusion*

Nous avons utilisé de l'eau pure comme liquide modèle. Le champ de MC est déterminé à partir de l'atténuation moyenne des rayons X par l'échantillon, son support et l'eau (Martin et al., 2021). Au préalable, une corrélation d'images est réalisée pour tenir compte du gonflement du bois (Roussey et al. 2018).

Lorsque le bois est partiellement saturé en eau, le flux diffusif d'O<sub>2</sub> dépend de la densité et de l'agencement des pores remplis par le liquide. Dans cette étude, on fait l'hypothèse que la valeur de  $D$  est une fonction de la fraction liquide dans les pores ( $x_l$ ) et peut être calculée selon une loi de mélange (Perré et Turner, 2001), dont le paramètre  $n$  doit être déterminé (Éq. 1).

$$D_{O_2/\text{bois saturé}} = (x_l \cdot D_{O_2/\text{bois saturé}}^n + (1 - x_l) \cdot D_{O_2/\text{bois sec}}^n)^{1/n} \quad (1)$$

### Protocole expérimental

L'expérimentation est conduite en trois phases. Dans un premier temps, la face avant est exposée à un balayage de N<sub>2</sub> sans liquide pendant 7 jours. Cette phase permet de déterminer  $D$  de l'O<sub>2</sub> dans le bois sec. Pour revenir à l'état initial, à savoir une concentration d'O<sub>2</sub> dans les pores du bois uniforme et égale à la concentration dans l'air, l'échantillon est ensuite soumis à des cycles de vide, hors du support. Lors de la seconde phase, l'échantillon est mis en contact avec l'eau avec bullage d'air. Il est ainsi possible de suivre l'imprégnation de l'eau dans le bois en absence de transfert d'O<sub>2</sub>. Enfin, après 25 jours d'imbibition et une diminution de la vitesse du front d'eau libre, l'air est substitué par le N<sub>2</sub>. La dynamique de variation d'O<sub>2</sub> en face arrière permet de déterminer la valeur de  $D$  dans le bois humide.

Quatre échantillons ont été utilisés. Les résultats de l'échantillon n°2 sont présentés ci-après.

### Résultats et discussion

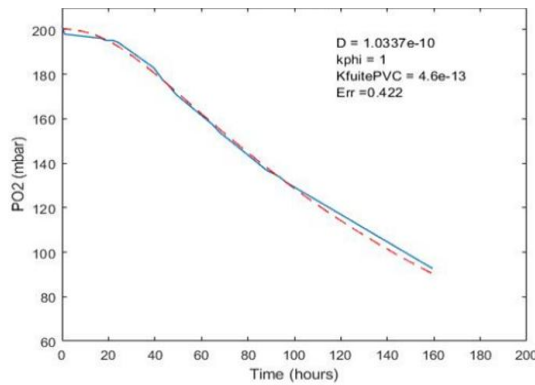


Fig. 2 : Dynamique de variation d'O<sub>2</sub> en face arrière du bois sec (échantillon n°2)

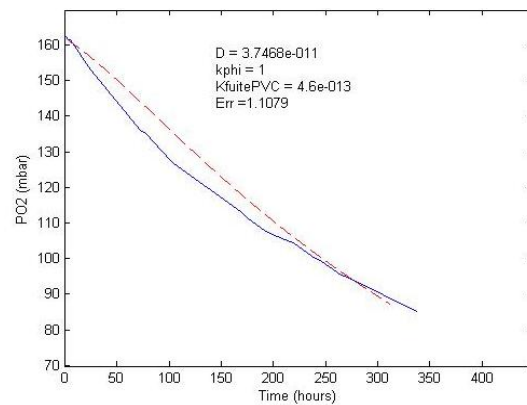


Fig. 3 : Dynamique de variation d'O<sub>2</sub> en face arrière du bois humide (échantillon n°2)

Avec le bois sec, moins de 7 jours sont nécessaires pour diviser par 2 la concentration d'O<sub>2</sub> en face arrière (Fig. 2), alors qu'il faut plus de 14 jours avec le bois humide (Fig. 3). Pour ces deux configurations, les valeurs globales de diffusivité identifiées pour l'échantillon sont respectivement  $D = 1,04 \cdot 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s et  $D = 3,75 \cdot 10^{-11}$  m<sup>2</sup>/s. Cependant, ce dernier résultat doit être affiné car la valeur de  $D$  varie spatialement car MC n'est pas uniforme. Plus précisément, la fraction de liquide dans les pores ( $x_l$ ) doit être considérée. L'application de la loi de mélange requiert donc au préalable la connaissance du champ de  $x_l$  et le coefficient de diffusion d'O<sub>2</sub> dans le bois saturé. Puisque l'O<sub>2</sub> ne diffuse que dans le réseau de pores du bois (et non à travers les parois cellulaires), on peut supposer que la tortuosité diffusive reste constante quelle que soit MC et en déduire une valeur de  $D$  dans le bois saturé en eau,  $1,24 \cdot 10^{-14}$  m<sup>2</sup>/s (Éq. 2).

$$\tau_d^2 = \phi \cdot \frac{D_{O_2/\text{bois sec}}}{D_{O_2/\text{air}}} = \phi \cdot \frac{D_{O_2/\text{eau}}}{D_{O_2/\text{bois saturé}}} \Rightarrow D_{O_2/\text{bois saturé}} = D_{O_2/\text{bois sec}} \cdot \frac{D_{O_2/\text{eau}}}{D_{O_2/\text{air}}} \quad (2)$$

On peut constater sur la figure 2 que MC augmente en haut de l'échantillon (en abscisse 0) dès la mise en contact avec le liquide. MC dépasse le point de saturation des fibres ( $\approx 30\%$  ; Siau, 1984) dès le 5<sup>ème</sup> jour. Du liquide est alors présent dans les pores du bois. Puis le front liquide progresse par migration capillaire dans l'épaisseur de l'échantillon

et atteint 3,3 mm au 41<sup>ème</sup> jour. Pour déduire  $x_l$  à partir de MC et, *in fine*, la valeur du paramètre  $n$  de la loi de mélange, la porosité locale devra être déterminée à partir de la densité du bois sec, par analyse d'images. Ceci fait l'objet de travaux en cours.

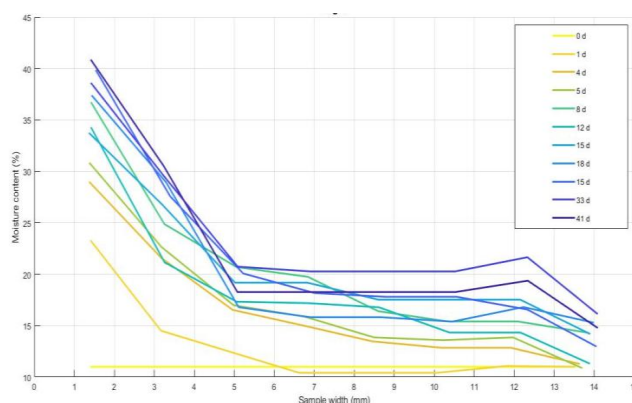


Fig. 2 : Évolution temporelle du champ de la teneur en eau dans l'échantillon n°2

### Conclusion et perspectives

Le dispositif expérimental et la méthode d'analyse présentés dans ce papier permettent de suivre les transferts couplés de liquide et d'O<sub>2</sub> dans le chêne, en s'approchant des conditions de chai. Les mesures ont très clairement témoigné de la diminution de la diffusion de l'O<sub>2</sub> en présence d'un front d'imprégnation qui progresse dans l'échantillon.

Les développements numériques à venir permettront d'identifier la valeur de  $n$ , paramètre de la fonction liant  $D$  à MC.

### Références

Martin B., Colin J., Lu P., Mounkaila M., Casalinho J., Perré P. et Rémond R. (2021) *Monitoring imbibition dynamics at tissue level in Norway spruce using X- ray imaging*, *Holzforschung*, accepté.

Nevarés I. et del Alamo-Sanza M. (2018) *New Materials for the Aging of Wines and Beverages: Evaluation and Comparison*, *Food Packaging and Preservation*, pp. 375–407.

Perré P., Pierre F., Casalinho J. et Ayouz M. (2015) *Determination of the mass diffusion coefficient based on the relative humidity measured at the back face of the sample during unsteady regimes*, *Drying Technology*, vol. 33(9), pp. 1068–1075.

Perré P. et Turner I. (2001) *Determination of the material property variations across the growth ring of softwood for use in a heterogeneous drying model Part II - Use of homogenisation to predict bound liquid diffusivity and thermal conductivity*, *Holzforschung*, vol. 55(4), pp. 417–425.

Roussey C., Colin J., Teissier Du Cros R., Casalinho J., Perré P. (2018) *Étude expérimentale du transfert de liquide dans le bois de chêne de tonnellerie par imagerie à rayons X*, 7<sup>èmes</sup> journées du GDR 3544 Sciences du Bois.

Roussey C., Perré P., Casalinho J. et Colin J. (2021) *Inverse analysis of oxygen diffusivity in oak wood using the back-face method: application to cooperage*, *Wood Science and Technology*, soumis.

Siau J. F. (1984) *Transport Process in Wood*. Berlin: Springer-Verlag.