Mesure de cartographies de teneur en eau par imagerie térahertz

Alain Sommier, Christophe Pradere, Hocine Boutaleb, Laura Rodriguez, Denis Bruneau, Jean-Rodolphe Puiggali, Jean-Christophe Batsale

I2M-TREFLE, UMR CNRS-ENSAM-UB 5295 Esplanade des Arts et Métier, 33405 Talence, France a.sommier@i2m.u-bordeaux1.fr

RÉSUMÉ. Cette étude présente une méthode d'imagerie multispectrale Terahertz (THz) permettant la mesure de teneur en eau dans des milieu poreux. Le système THz est décrit tout comme la méthode de calibration de teneur en eau. La précision de cette technique expérimentale est démontrée en comparant la mesure de profils de teneur en eau en fonction du temps dans de la cellulose et les profils théorique obtenus par un modèle de séchage 1D. Enfin nous présentons les mesures réalisées lors du séchage de pin maritime.

ABSTRACT. This study reports a multispectral Terahertz (THz) imaging method in order to measure water content in porous materials. The THz device is presented as well as measurements calibration for water content. The robustness of this experimental technique is then improved, by comparing measurements of time evolution of water content profiles in pure cellulose with theoretical profiles from a diffusive drying model. Finally, experimental results concerning the drying of pine wood are presented.

MOTS-CLÉS : spectroscopie TeraHertz, atténuation, cartographie, teneur en eau, séchage, diffusion massique.

KEYWORDS: multispectral Terahertz image, water content, pine wood, drying process.

DOI:10.3166/I2M.15.3-4.161-175 © 2016 Lavoisier

1. Introduction

La compréhension des phénomènes de transferts d'une (ou plusieurs) phase(s) fluide(s) en milieu poreux tels que les bois ou les bétons amène, à l'échelle du laboratoire, recoure à l'emploi de techniques permettant d'effectuer un suivi spatiotemporel des profils de saturation(s) de ce(s) fluide(s). Du fait du caractère fortement opaque de ces milieux, les techniques d'atténuations non intrusives employées pour effectuer ce suivi utilisent des rayonnements nocifs pour l'homme (rayonnement X ou gamma notamment) (Priyda et al., 2014). Ainsi, la transposition de ces techniques est difficilement envisageable à l'échelle d'un procédé industriel d'élaboration ou de transformation de milieux poreux. Or, ce suivi de qualité de produit, est crucial, notamment pour des produits poreux à forte valeur ajoutée comme le bois par exemple qui nécessite des précautions particulières en termes de suivi du procédé de fabrication et de transformation. Ainsi, tout l'intérêt de ces ondes THz non ionisantes apparaît. En revanche, par comparaison avec les microondes ou les radio-fréquences, on retrouve les mêmes avantages, seule la longueur d'onde varie et par conséquent permettra l'étude ou non de certains matériaux en fonction de leur semi-transparence. De même la résolution spatiale sera directement proportionnelle à la longueur d'onde.

Dans un but de remédier à cette carence de métrologie transposable à l'échelle des procédés, une méthode de suivi à l'échelle locale de la teneur en eau d'un milieu poreux utilisant une technique de spectroscopie térahertz est proposée ici. De façon à mettre en avant la faisabilité de cette nouvelle technique expérimentale, des expériences de transfert d'une phase fluide (eau) dans deux milieux poreux hygroscopiques (cellulose et bois de pin maritime), sous l'effet d'une sollicitation thermique (séchage) sont proposées.

Dans un premier temps, une description détaillée du banc de mesure basé sur de la tomographie THz sera présentée, puis des milieux poreux (cellulose et bois de pin maritime) seront étudiés. Pour cela, l'étude des transferts d'eau liée dans un matelas cellulosique soumis à un flux de séchage sera réalisée après une phase de calibration qui consiste à déterminer les coefficients d'atténuation de la matrice solide (cellulose) et de l'eau liée. Enfin, l'évolution temporelle expérimentale des profils de teneur en eau sera mesurée, puis confrontée aux résultats issus d'un modèle de diffusion 1D homogène de la matrice solide cellulosique. Finalement, le suivi expérimental du séchage d'un échantillon mince hétérogène de pin maritime (préalablement imbibé d'eau par immersion prolongée) en fonction de l'orientation des cernes (horizontales ou verticales) sera détaillé.

2. Présentation du banc de mesure THz

Le rayonnement Térahertz (THz) se réfère aux rayonnements électromagnétiques dont les fréquences sont comprises entre 0,1 et 30 THz mais l'étendue de ce domaine est souvent très variable, (Abbot et Zhang, 2007). Il correspond à des longueurs d'ondes allant de 2 µm à quelques millimètres. Un des avantages de ces rayonnements est de pouvoir traverser des matériaux isolants thermiques et généralement opaques comme : le bois, les vêtements, les plastiques, le papier, le plâtre, etc. Ces rayonnements sont, de manière générale, absorbés par l'eau et réfléchis par les métaux.

Un banc de spectroscopie THz point par point (cf. figure 1) permettant la caractérisation de matériaux hétérogènes (Bessou et al., 2012) est utilisé dans cette étude, il se compose : 1), d'une source THz (émetteur monochromatique de type diode Gunn, fréquence : 110 GHz, puissance : 200 mW). Le signal émis est modulé à une fréquence de 16 Hz via une détection synchrone qui mesure l'intensité transmise et réfléchie par l'échantillon. Ce signal incident est collecté par deux monocapteurs bolométriques multispectraux (pyromètre), 2), de lentilles en téflon (transparentes au THz) pour focaliser les rayons, 3), d'un miroir dichroïque qui autorise la transmission du rayonnement THz incidente vers l'échantillon et renvoie le signal réfléchi par ce dernier vers le pyromètre qui est relié à une détection synchrone et 4) de moteurs pas à pas qui permettent de déplacer l'objet à analyser afin de réaliser une cartographie 2D ou 3D. La résolution spatiale d'un point de mesure est de 2 mm avec une vitesse d'acquisition de 2 s par point et une sensibilité de l'ordre de 0,01 mV pour un signal total de 200 mV. Ce qui représente une incertitude de 0,5 %.

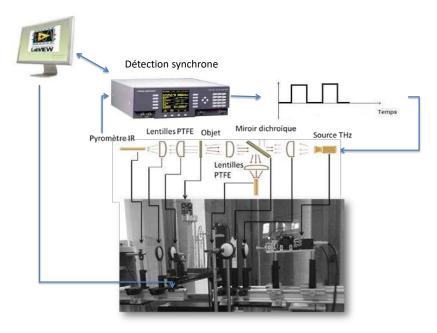


Figure 1. Banc d'imagerie spectroscopique THz point par point en transmission/réflexion

L'atténuation du signal transmis à travers les échantillons évolue selon une loi de type Beer-Lambert et s'écrit :

$$I(z,\lambda) = I(0,\lambda)\exp(-\alpha(\lambda)z)$$
 (1)

Où, λ est la longueur d'onde du rayonnement incident, I_0 est l'intensité du rayonnement incident en z=0, I est l'intensité du rayonnement transmis, α est le coefficient d'absorption et z est la distance du trajet optique au travers de l'objet analysé.

3. Présentation des matériaux de l'étude

Le bois est un tissu végétal qui, dans le contexte actuel du développement durable, suscite un intérêt croissant. Il possède des avantages techniques considérables : une bonne résistance mécanique, un module élastique élevé, une faible densité, des propriétés isolantes, un caractère renouvelable et un coût peu élevé. Il présente certains défauts liés notamment à son anisotropie, sa photosensibilité et son caractère hydrophile qui génère des problèmes tels que les attaques d'insectes, de champignons ou de tenue mécanique dans le temps (e.g. retraits, fentes, déformations, etc.). Le séchage du bois permet de limiter ces phénomènes néfastes et lui confère une durabilité certaine. Les approches classiques du séchage se limitent souvent à un suivi de l'évolution de la masse du produit et des conditions thermiques, hydriques et de pression qui lui sont appliquées (Nadeau et Puiggali, 1995; Bimbenet *et al.*, 2002).

C'est un matériau composite naturel composé d'un renfort (fibres résistantes cellulosiques) noyé dans une matrice moins résistante mécaniquement (lignine), l'hémicellulose servant d'interface fait le lien entre ces matériaux.

La première grandeur qui caractérise l'état d'hydratation d'un produit est sa teneur en eau (w), exprimée en kg d'eau par kg de matière sèche. Dans les faits, un solide n'est jamais isolé; il est entouré d'une atmosphère contenant de la vapeur d'eau, avec laquelle il échange des molécules d'eau. L'intensité de ces échanges dépend de l'écart à l'état d'équilibre thermodynamique de la phase solide avec l'air humide l'environnant. Cet état d'équilibre est caractérisé par la notion d'activité de l'eau (a_w) , qui représente la capacité du solide à retenir l'eau dans sa structure et à la maintenir pendant l'application des forces extérieures. La présence et l'état de l'eau dans ces solides sont graphiquement représentés par des isothermes de sorption.

On considère fréquemment que l'eau existe dans un matériau sous forme d'eau « liée » et d'eau « libre ». La première est celle décrite ci-dessus. La seconde est l'eau retenue dans les espaces interstitiels et les pores par des forces de capillarités liées à la tension superficielle du liquide. Elle correspond (Nadeau et Puiggali, 1995), à l'état capillaire et présente des propriétés semblables à celles de l'eau libre $(a_W = 1)$.

Les milieux poreux hygroscopiques considérés dans cette étude sont : 1), un matelas cellulosique pour suivre les transferts d'eau liée dans un matériau à teneur en eau initiale uniforme et contrôlée et 2), un échantillon de bois pour suivre les transferts d'eau libre dans un matériau initialement imbibé. Concernant le matelas cellulosique, il est au préalable mis en équilibre hygroscopique avec un air humide dont la teneur en eau est fixée par mise en équilibre avec une solution saline placée dans une étuve à température contrôlée. L'échantillon de bois est quant à lui immergé pendant une longue période dans de l'eau.

4. Validation sur un milieu homogène de type papier buvard

4.1. Calibration du système de mesure

Les premiers essais ont été réalisés sur du papier buvard sec (composé à plus de 99% de cellulose) qui est un tissu végétal simple (mono composite) aux propriétés proches de celles du bois. La zone explorée de l'échantillon par le faisceau THz est un carré de 10 mm x 10 mm pris au centre de l'échantillon. Le système effectue un scan point par point (résolution 1 mm) de la surface totale à observer. Cela représente, une image de 100 points de mesure en transmission. Afin de mettre en évidence le comportement de type Beer-Lambert, les feuilles unitaires de papier buvard (e = 0.2 mm) sont empilées pour obtenir différentes épaisseurs allant de 0.2 à 8 mm.

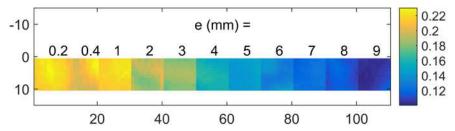


Figure 2. Images de la transmission du faisceau THz à travers différentes épaisseurs de papiers buvard. L'unité représente l'intensité transmise en volt

La figure 2 présente les images de l'intensité (I) transmise mesurée à travers le buvard pour les différentes épaisseurs. Il est intéressant de noter que pour de faibles épaisseurs (0,2 à 2 mm), cette intensité n'est pas uniforme sur la surface testée. Cela indique une hétérogénéité du matériau en termes d'épaisseur ou de compactage des fibres, voir incertitudes représentées figure 3.

Afin de valider une dépendance de la transmission à la loi de Beer-Lambert (equation (1)), le logarithme négatif de la moyenne spatiale des images normalisées par l'intensité incidente I_0 (faisceau THz seul) est représentée en fonction des différentes épaisseurs figure 3. Il apparaît clairement que, l'absorbance augmente de manière linéaire avec l'épaisseur. Par régression linéaire on obtient une absorbance de 0,08 mm⁻¹ pour le papier buvard. Cela démontre la dépendance de type Beer-Lambert et montre que la fraction de flux que traverse l'échantillon diminue au fur et à mesure que l'épaisseur de l'échantillon augmente.

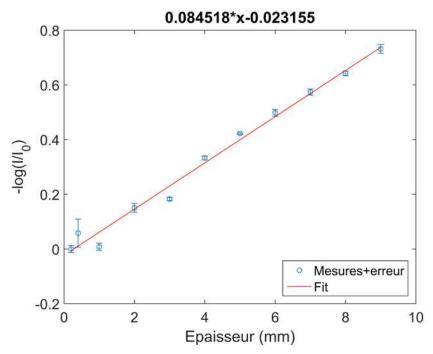


Figure 3. Absorbance du buvard en fonction de l'épaisseur, l'erreur représentée résulte de l'écart type spatial de chacune des images

Afin de s'affranchir de problèmes d'hétérogénéités spatiales et pour maintenir une bonne sensibilité de mesure, l'épaisseur retenue pour la suite de l'étude sera de 2 mm. Afin de construire l'isotherme de sorption (figure 4a), des blocs de 2 mm sont préalablement mis en équilibre (via des solutions salines) à différentes activités d'eau (a_W) allant de 8 à 83 % et la prise en masse est mesurée par le biais d'une pesée pour obtenir la teneur en eau à l'équilibre (figure 4a). De la même façon, ces mesures sont réalisées sans contact par le système THz (figure 4a), ce qui permet (figure 4b) de représenter l'atténuation du signal obtenu par mesure THz en fonction de la teneur en eau mesurée par pesé. Il faut souligner la relation linéaire qui permet de relier directement la teneur en eau à l'intensité du signal THz.

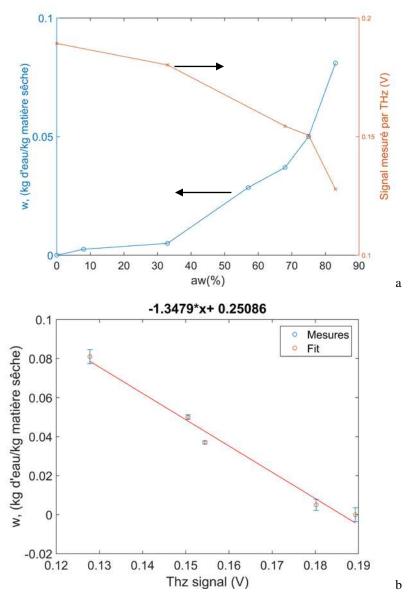


Figure 4. a) superposition des courbes de sorption du papier buvard (épaisseur 2 mm) mesurées par pesée et par imagerie THz; b) moyenne des intensités (I/I₀) transmises par imagerie THz en fonction de la teneur en eau

Ceci permet de valider la nouvelle technique d'imagerie proposée dans ce travail qui ouvre de nouvelles perspectives dans les études de suivi de la teneur en eau à l'échelle locale en fonction de l'espace et du temps. Cela va conduire à l'estimation des coefficients de diffusions massique à l'échelle locale dans des milieux hétérogènes.

4.2. Suivi THz spatio-temporel du séchage

Les échantillons sont préparés par découpe des feuilles de papier buvard afin d'obtenir 20 échantillons de longueur 12 cm, de largeur 0,5 cm et de 0,2 mm d'épaisseur. Ces échantillons sont empilés pour obtenir un seul matériau d'épaisseur totale 4 mm. Cet ensemble est placé dans une enceinte rectangulaire (section carré) qui est transparente aux rayonnements THz et qui est ouverte sur ses deux extrémités (figure 5). Pour imposer le taux d'humidité, l'échantillon est maintenu, par le biais d'une solution saline (KCl) (humidité relative fixe de 83 %), sous atmosphère contrôlée dans une étuve à température imposée de 30 °C. Cet ensemble (figure 5) est placé sur le dispositif THz (figure 1) pour réaliser le suivi temporel du séchage. Les mesures sont réalisées à différentes hauteurs (100 x 1 mm) le long de la zone délimitée par les marques de la figure 5 et au cours du temps. Le résultat de ces mesures représente une image spatiotemporelle figure 5 qui correspond à un vecteur de ces 100 points spatiaux réalisés toutes les 26 min pendant 17 h. On notera que le temps nécessaire à la mesure spatiale, soit 100 points est de l'ordre de 100 s.

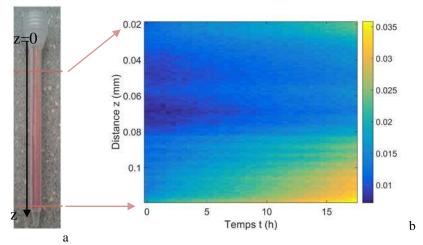


Figure 5. a) Présentation de l'échantillon à analyser et de la zone de mesure entre les deux traits horizontaux (100 points d'espace de 1 mm chacun) et b) suivi de l'intensité THz transmise en fonction du temps lors du séchage

Il apparaît clairement, figure 5, que la teneur en eau initiale (t=0) n'est pas totalement homogène (première ligne verticale). La partie basse de l'échantillon (inférieure à z=30 mm correspondant aux pixels 70 à 100) présente une teneur en

eau initiale plus faible car la condition aux limites représentées par l'orifice inférieur du porte échantillon est de plus faible diamètre (d = 2 mm) que son homologue supérieur (d = 1 cm) ce qui ne permet pas une mise à l'équilibre parfaite du papier buvard. Cela créé une dissymétrie dans le profil de teneur en eau. De même l'ensemble est maintenu par le biais d'une pince métallique (non représenté ici) qui masque les 2 premiers centimètres de l'échantillon. Pour ces raisons, l'imagerie (figure 5b) est réalisée entre les positions z = 2 et 12 cm.

4.3. Modélisation 1D des transferts de masse et estimation du coefficient de diffusion massique

L'ensemble du problème décrit précédemment peut être modélisé analytiquement par un problème 1D transitoire (loi de Fick) de diffusion massique, selon le modèle suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial X}{\partial t} - D \frac{\partial^2 X}{\partial z^2} = 0\\ X(t = 0, z) = X_0\\ X(t, z = 0) = X(t, z = L) = X_1\\ X = \frac{w(z, t)}{w(z, 0)} \end{cases}$$
(2)

Avec: w la teneur en eau (kg d'eau par kg de matière sèche), X, teneur en eau adimensionnée, D, coefficient de diffusion massique (m².s⁻¹), t, temps en s, z, hauteur en m, X_0 , teneur en eau initiale et X_1 , teneur en eau de l'atmosphère ambiante. Ce système est résolu par une méthode de type transformée intégrale de Fourier selon z et sa solution générale est :

$$X(z,t) = X_0 + \sum_{n=1}^{+\infty} \left[(X_1 - X_0) F(\alpha_n, 0) \exp(-D\alpha_n^2 t) \sin(\alpha_n z) \right]$$

$$avec: \quad \alpha_n = \frac{n\pi}{L}$$
(3)

À partir de cette solution analytique et du champ spatio-temporel mesuré (figure 5b), une minimisation au sens des moindres carrés par méthode de type Levenberg-Marquardt est réalisée pour estimer le coefficient de diffusion massique, D, ainsi que la teneur en eau de l'atmosphère ambiante, X_l . Les résultats obtenus sont représentés figure 6 où le champ mesuré (figure 6a) et estimé (figure 6b) sont tracés. Pour cela, le champ mesuré (figure 5) est converti en teneur en eau w (voir figure 4b) puis adimensionné par sa valeur initiale pour obtenir la grandeur X de l'équation (3).

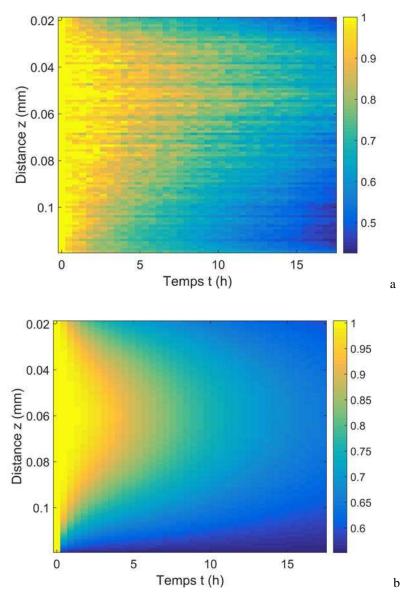


Figure 6. a) Intensité THz mesurées expérimentalement et convertie en teneur en eau (voir figure 4b) puis adimensionnée selon l'équation (3); b) Champ spatiotemporel calculé avec les paramètres estimés $[D_{est} = 4,07.10^{-8} m^2.s^{-1}]$ et $X_{lest} = 0,55$ par minimisation et le modèle équation (3)

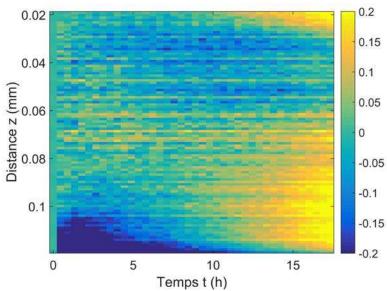


Figure 7. Résidus obtenus entre champs mesurés et calculés, (Ic-Im)/Ic

Les résultats (figure 6b) de la minimisation de l'équation de diffusion massique (3) est en bon accord avec les données obtenues expérimentalement (figure 6a). De même le coefficient de diffusivité massique estimé, $D_{est} = 4,07.10^{-8} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, présente un écart de 2 % avec les données fournies par la littérature (Desrosiers, 2009), $D = 4.10^{-8}$ m².s⁻¹. Cependant, il faut noter que l'inhomogénéité dans la teneur en eau initiale du buvard $(F(\alpha_m 0))$, non prise en compte dans la modélisation, pénalise la parfaite concordance entre les champs calculés et mesurés, même si les résidus obtenus figure 7 sont assez homogènes. Malgré cela, dans ce travail tout l'intérêt des méthodes de champ associées à des méthodes inverses est mis en évidence pour l'estimation locale de diffusivité massique dans des problèmes de séchage.

5. Mesures sur des matériaux hétérogènes de pin maritime

La préparation des échantillons est réalisée de la façon suivante : 1), une coupe radiale de bois sec de type pin maritime de dimensions 40,3 mm x 29,7 mm et 3,4 mm d'épaisseur puis, 2), l'échantillon a été immergé dans de l'eau pendant 24 h de façon à l'imbiber complètement.

Une mesure de masse de l'échantillon avant et après le mouillage a permis de déterminer sa teneur en eau base sèche initiale correspondante à $w_0 = 1,082 \text{ kg}$ d'eau/kg bois sec.

Dans ces milieux hétérogènes de pin maritime, il est intéressant de mettre en évidence l'influence de l'orientation des cernes sur les cinétiques de séchage. Pour cela, des cartographies THz, spatiales (10 mm x 10 mm au centre des échantillons) et temporelles (toutes les 400 s), de la teneur en eau adimensionnée sont réalisées selon deux orientations des cernes sur des durées de 17 h. Afin de mettre en évidence les temps caractéristiques associés aux cinétiques de séchage, la moyenne de ces images peut être représentée figure 8 en fonction du temps.

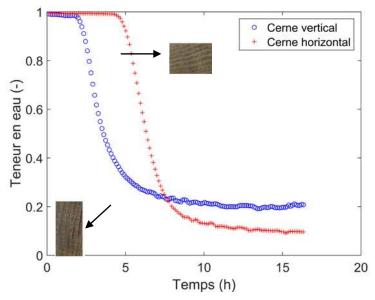


Figure 8. Suivi THz de la moyenne des images correspondant la teneur en eau adimensionnée du pin maritime pour les orientations horizontales et verticales des cernes

Il apparaît clairement que le début du régime de séchage est très différent selon l'orientation. En effet, pour les cernes verticaux le départ se fait au bout de 2 h contre 6 h dans le cas horizontal. De la même, on peut noter que l'équilibre hydrique à l'état final est différent d'une mesure à l'autre car elles ont été réalisées pour 2 taux d'humidité différents dans la pièce (variation journalière). Ainsi, il est intéressant de reporter les images obtenues dans les parties les plus dynamiques de ce suivi qui correspondent aux temps allant de 2 h à 6 h pour les cernes verticaux (figure 9a) et de 4 h à 10 h pour les cernes horizontaux (figure 9b). Dans ces gammes de temps, seules 20 images seront extraites selon un intervalle de temps régulier.

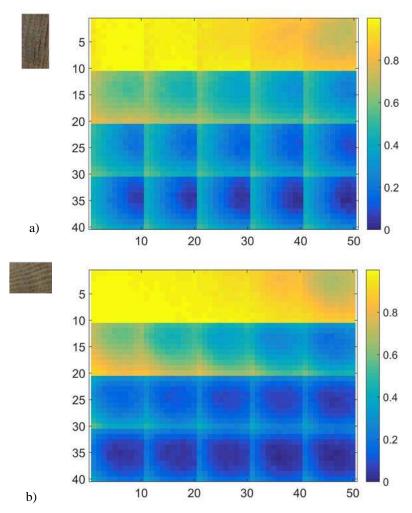


Figure 9. Suivi THz de la teneur en eau adimensionnée du pin maritime : a) lorsque les cernes sont orientés verticalement et, b) horizontalement

Les figures 8 et 9 mettent en évidence que quand les cernes sont verticaux (figure 9a), la zone cartographiée de l'échantillon de bois se déshydrate plus vite que quand les cernes sont horizontaux (figure 9b). Cela montre que la position des cernes influe sur le temps de séchage (figure 8) notamment via l'écoulement gravitaire accentué par la position verticale des cernes. En effet, l'échantillon présente une alternance de cernes de printemps et d'été aux perméabilités différentes (Sedighi-Gilania et al., 2012).

Les cernes de printemps sont plus perméables que ceux d'été, ce qui favorise l'écoulement gravitaire quand ceux-ci sont verticaux. De même, la position horizontale des cernes va très certainement limiter/ralentir les phénomènes d'écoulement gravitaire retenant ainsi plus longtemps l'eau au cœur du produit.

4. Conclusions et perspectives

La méthode d'imagerie THz en transmission décrite dans cet article permet une mesure quantitative spatiotemporelle (image avec résolution de 1x1 mm par pixel) de la teneur en eau ou de l'activité de l'eau d'un matériau semi transparent aux rayonnements THz comme le bois. Il a été montré qu'une relation directe entre l'intensité du faisceau THz et la teneur en eau existe et qu'elle peut être décrite par la loi de Beer Lambert, cette phase nous a permis d'établir un protocole d'étalonnage et de calibration du dispositif. Ensuite, grâce à l'imagerie l'estimation des coefficients de diffusion massique a pu être obtenue dans le cas d'un milieu homogène comme le papier buvard. Il apparait dès lors possible d'appliquer ce type d'outils (instrumentation de mesure + méthodes inverse) pour l'étude des transferts de masse dans des matériaux homogènes et/ou hétérogènes.

De plus, une première étude menée sur une lame de pin maritime a permis de mettre en évidence grâce à ces images l'importance de l'orientation des cernes de bois sur la vitesse de séchage. De même il est tout à fait envisageable d'obtenir des cinétiques de séchages en implémentant de nouvelles méthodes inverses.

Finalement, les perspectives sont de réaliser ce type de méthodes sur des système de caméra THz (Romano et al., 2016) pour des acquisitions d'images plus rapide et de meilleure résolution spatiale, permettant un suivi plus dynamique de la teneur en eau lors des phénomènes d'imbibition ou le séchage de matériaux fortement hétérogènes.

Remerciements

Nous remercions Stéphane Grelier, du Laboratoire de chimie des polymères organiques de l'Université de Bordeaux, pour la fourniture des matelas cellulosiques utilisés lors des expériences préalables aux résultats présentés dans cet article.

Bibliographie

Abbot D. et Zhang X.-C. (2007). Scanning the Issue: T-Ray Imaging, Sensing, and Retection. *Proceedings of the IEEE*, vol. 95, n° 8, p. 1509-1513.

Bessou M., Chassagne B., Caumes J.-P., Pradere C., Maire P., Tondusson M., Abraham E., (2012). Three-dimensional terahertz computed tomography of human bones, Applied Optics, ISSN: 0003-6935, vol 51, n° 28, p. 6738-6744.

Bimbenet J.J., Duquenoy A., Trystram G. (2002). Génie des procédés alimentaires : des bases aux applications, édition Dunod.

- Desrosiers D. (2009). Modélisation du transfert de chaleur et d'humidité dans une membrane de cellulose, mémoire de maîtrise, Université du Québec (Trois-Rivières, Montréal).
- Nadeau J.P., Puiggali J.R. (1995). SECHAGE: des processus physiques aux procédés industriels, Lavoisier Tec&Doc Ed., Paris.
- Priyada P., Ramar R., Shivaramu (2014). Determining the water content in concrete by gamma scattering method, Annals of Nuclear Energy, vol. 63, January, p. 565-570.
- Romano M., Chulcov A., Sommier A., Balageas D., Vavilov V., Batsale J.C., Pradere C., (2016). Broadband sub-terahertz camera based on photothermal conversion and IR thermography, Journal of Infrared Millimeter and Terahertz Waves.
- Sedighi-Gilania M., Griffaa M., Mannesb D., Lehmannb E., Carmelietc J., Deromed D. (2012). Visualization and quantification of liquid water transport in softwood by means of neutron radiography. International Journal of Heat and Mass Transfer, vol. 55, n° 21-22, October, p. 6211-6221.