

## Quelques aspects du comportement hygromécanique du papier

JEAN-FRANCIS BLOCH<sup>1</sup>, PIERRE J.J. DUMONT<sup>1,a</sup>, SABINE ROLLAND DU ROSCOAT<sup>2</sup>,  
LAURENT ORGÉAS<sup>2</sup>, CHRISTIAN GEINDREAU<sup>2</sup> ET NICOLAS BOUQUET<sup>1</sup>

<sup>1</sup> CNRS/Institut polytechnique de Grenoble (Grenoble INP), Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers (LGP2), BP 65, 38402 Saint-Martin-d'Hères Cedex, France

<sup>2</sup> CNRS/Universités de Grenoble (UJF & Grenoble INP), Laboratoire Sols-Solides-Structures-Risques (3S-R), BP 53, 38041 Grenoble Cedex 9, France

Reçu le 28 août 2008, accepté le 9 avril 2009

**Résumé** – Les papiers sont des matériaux complexes qui sont constitués essentiellement de fibres cellulosiques. La nature des fibres, généralement issues de bois de feuillus ou de résineux, les opérations d'obtention et les traitements mécaniques, que celles-ci subissent, ont un impact très important sur les structures poreuses obtenues. La porosité des papiers peut ainsi varier de 1 % à 95 % selon les propriétés visées pour leur usage final. Leurs propriétés mécaniques vont en être affectées de manière très importante. En effet, leur résistance mécanique est liée à la qualité des fibres et des liaisons entre ces fibres. En outre, elle est très largement influencée par l'orientation des fibres et l'humidité. L'ensemble de ces facteurs engendre des problèmes de stabilité dimensionnelle (ou plutôt d'instabilité dimensionnelle) des papiers, qui peuvent s'avérer extrêmement problématiques lorsqu'ils sont transformés ou imprimés par exemple. En conséquence, il est important de mieux comprendre les modifications tant structurales que des propriétés mécaniques des papiers induites par des variations d'humidité. Des expériences ont été menées dans ce but sur un papier impression-écriture. D'autres expériences, basées sur la microtomographie synchrotron, ont été effectuées à l'ESRF, « European Synchrotron Radiation Facility », afin de visualiser, à l'échelle microscopique, la structure fibreuse de ce papier et les évolutions de cette dernière lorsqu'il est placé dans un environnement où l'humidité relative varie.

**Mots clés** : Papier / anisotropie / humidité / déformation / structure fibreuse

**Abstract** – **Some aspects of the hygromechanical behaviour of paper.** Paper is mainly made up of cellulosic fibrous materials. On one hand, the nature of the fibres (softwood or hardwood) and on the other hand, their mechanical treatments severely affect the obtained porous structure. The porosity can vary from 1% to 95% according to the aimed end-use properties. Consequently, the mechanical behaviour strongly varies. Indeed, the mechanical resistance is related on the quality of fibres and the bonds between these fibres. Moreover, the mechanical behaviour of the final products is influenced by both the orientation of fibres and moisture. Consequently, it is important to better understand the moisture-induced changes of dimensions and mechanical properties of papers. Experiments were undertaken to this end. Moreover, in order to observe the fibrous microstructure of paper, experiments based on synchrotron microtomography were carried out with the help of the "European Synchrotron Radiation Facility" (ESRF).

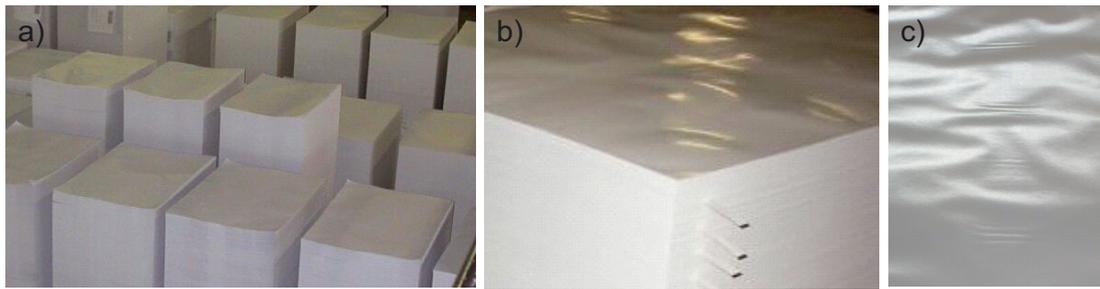
**Key words**: Paper / anisotropy / moisture / deformation / fibrous structure

### 1 Introduction

Les papiers peuvent être vus comme des structures minces, poreuses formées par un réseau complexe de fibres végétales.

Les différentes opérations unitaires (opérations de formation, pressage, séchage pour citer les opérations primordiales, opérations de couchage, de calandrage ou de lissage pour la finition) ont un impact fort sur les propriétés microstructurales des papiers, et par conséquent sur leur propriétés mécaniques, thermiques, optiques... Ainsi, lors de la formation du matelas fibreux, la différence

<sup>a</sup> Auteur pour correspondance :  
pierre.dumont@grenoble-inp.fr



**Fig. 1.** Photographies de piles de papiers entreposées chez un imprimeur présentant des problèmes de tuilage (a), de gondolage (b) et de plissements (c).

entre la vitesse du jet de pâte à papier et celle de la toile de formation de la machine à papier va engendrer une orientation des fibres plus ou moins importante. Les papiers auront ainsi des propriétés mécaniques anisotropes plus ou moins marquées.

Les fibres sont issues essentiellement de différentes essences de bois (largeur de 14 à 40  $\mu\text{m}$ , longueur de 1 à 2 mm) et ont elles-mêmes une structure complexe : elles sont constituées de plusieurs parois comportant des micro-fibrilles organisées en hélice, ce qui leur confère un comportement mécanique intrinsèquement anisotrope. Ces fibres ont une énorme propension à gonfler avec l'humidité : pour une variation comprise entre 0 et 100 % de l'humidité relative de l'air, à température ambiante, leur longueur peut varier de 1 % tandis que leur largeur peut s'accroître jusqu'à 20 % ! La cohésion du réseau est assurée par les liaisons (de nature hydrogène) entre les fibres qui se forment principalement au cours du séchage du papier. Cette opération unitaire induit des états complexes de contraintes résiduelles au niveau des liaisons fibre à fibre et dans les segments de fibres compris entre les liaisons. Elle a une influence fondamentale sur les propriétés mécaniques des papiers, ainsi que pour leurs propriétés d'hygroexpansion. Ces différentes propriétés peuvent être largement modifiées par l'opération dite de raffinage, qui rend les fibres plus souples, fait apparaître des fibrilles, voire les coupe.

À une échelle de l'ordre de 10 mm, le réseau fibreux comporte, en plus des fibres, un grand nombre de particules telles que des fines ou des charges minérales (par exemple du carbonate de calcium ou du dioxyde de titane). Des revêtements (sauce de couchage à base de latex ou de résines polymériques) peuvent également lui être appliqués afin d'en améliorer les propriétés physiques, optiques et mécaniques.

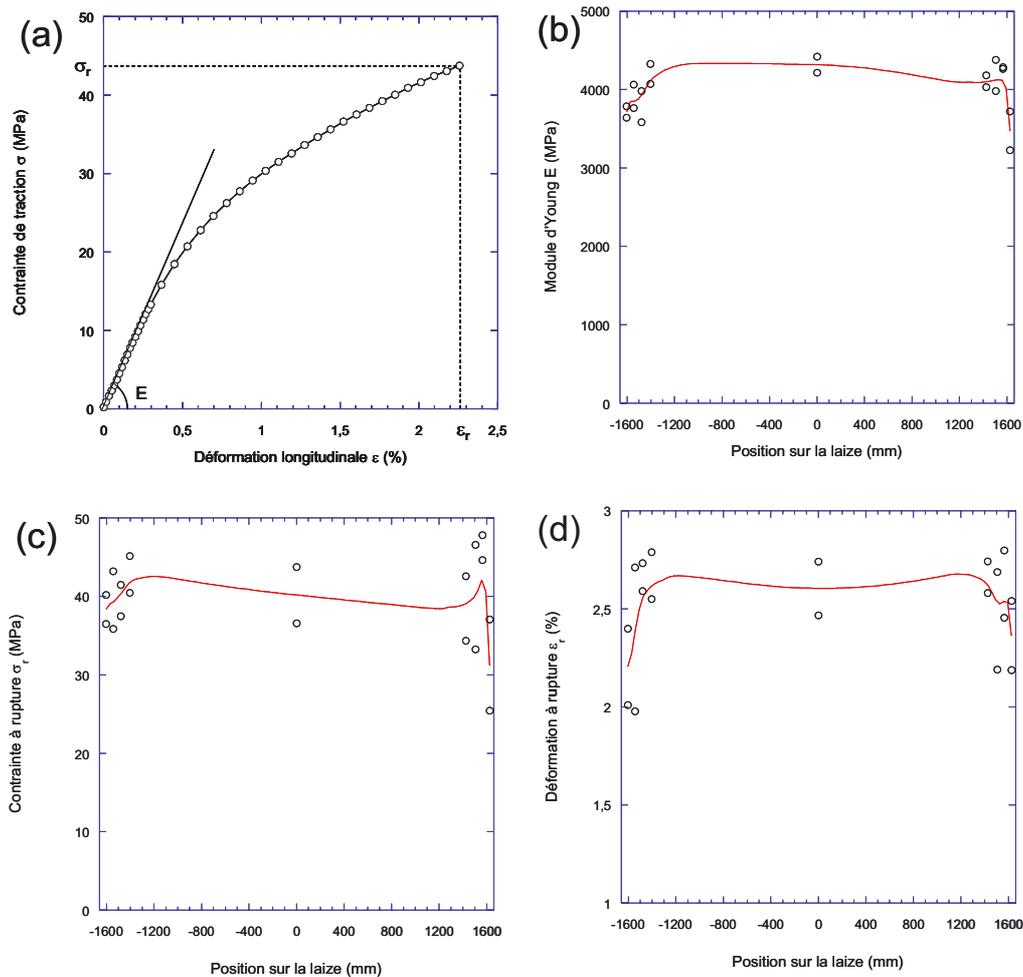
À une échelle plus grande (de 1 à >10 cm), en parcourant le papier dans son plan, des variations locales de grammage (appelées épaisseur dans le domaine papetier), d'orientation des fibres peuvent être constatées.

Les conditions environnementales en température et en humidité relative ont un impact très fort sur les propriétés mécaniques des papiers [1]. Les imprimeurs et les industriels qui transforment les papiers et cartons sont confrontés à des problèmes dits de stabilité dimensionnelle. Ceux-ci se traduisent par des variations

dimensionnelles dans le plan des papiers, mais aussi des déformations hors plan (cf. Fig. 1) comme des ondulations (cordons, rides, chevrons ou nids d'abeilles), des bords flottants (sur les bobines), d'à-plat (gondolage, plissements, cloques), du tuilage ou du cintrage. Ces déformations et les défauts géométriques qui en résultent sont plus ou moins localisés sur les laizes des bobines et les feuilles qui en sont extraites. Elles apparaissent généralement en raison de variations de la température et de l'humidité relative de l'air ambiant ou parfois de mouillage des papiers au cours des différentes phases des procédés d'impression (opérations de repérage et de positionnement, de séchage des encres), de copie (fusion du toner à haute température) et de transformation (découpe et pliages). Elles sont bien sûr dommageables à toutes ces opérations de mise en œuvre [2].

L'objectif est ici de mieux comprendre l'influence des variations de l'humidité relative de l'air sur les propriétés de stabilité dimensionnelle d'un papier impression-écriture de l'échelle de la laize (>1 m) à l'échelle de la fibre (10  $\mu\text{m}$ ). La première partie sera consacrée à la description de l'évolution des propriétés mécaniques telles que le module de Young, la contrainte et la déformation à la rupture moyennes à l'échelle de la laize. L'influence de l'anisotropie microstructurale sur les propriétés mécaniques est également mise en évidence en mesurant ces mêmes propriétés mécaniques sur des échantillons prélevés au centre de la laize dans différentes directions. La deuxième partie est consacrée à l'influence de l'humidité relative de l'air sur l'hygroexpansion naturelle, à l'échelle de l'échantillon standard (10 cm), également prélevé au centre de la laize. Les résultats d'un modèle macroscopique d'élasto-hystérésis à mémoire discrète sont présentés pour décrire le comportement hygroexpansif naturel dans le plan de ce papier. Enfin, quelques résultats illustrent l'influence de l'humidité sur l'hygroexpansion naturelle de la microstructure fibreuse. Ils ont été obtenus en analysant des images tridimensionnelles par microtomographie aux rayons X à l'ESRF : « European Synchrotron Radiation Facility ».

Pour illustrer ces différents points, les échantillons utilisés pour les expériences proviennent d'une laize (3,32 m) d'un papier impression-écriture fourni par un partenaire industriel. L'épaisseur de ce papier est de  $121 \pm 1 \mu\text{m}$  (mesurée selon la norme NF Q 03 016). Son grammage est



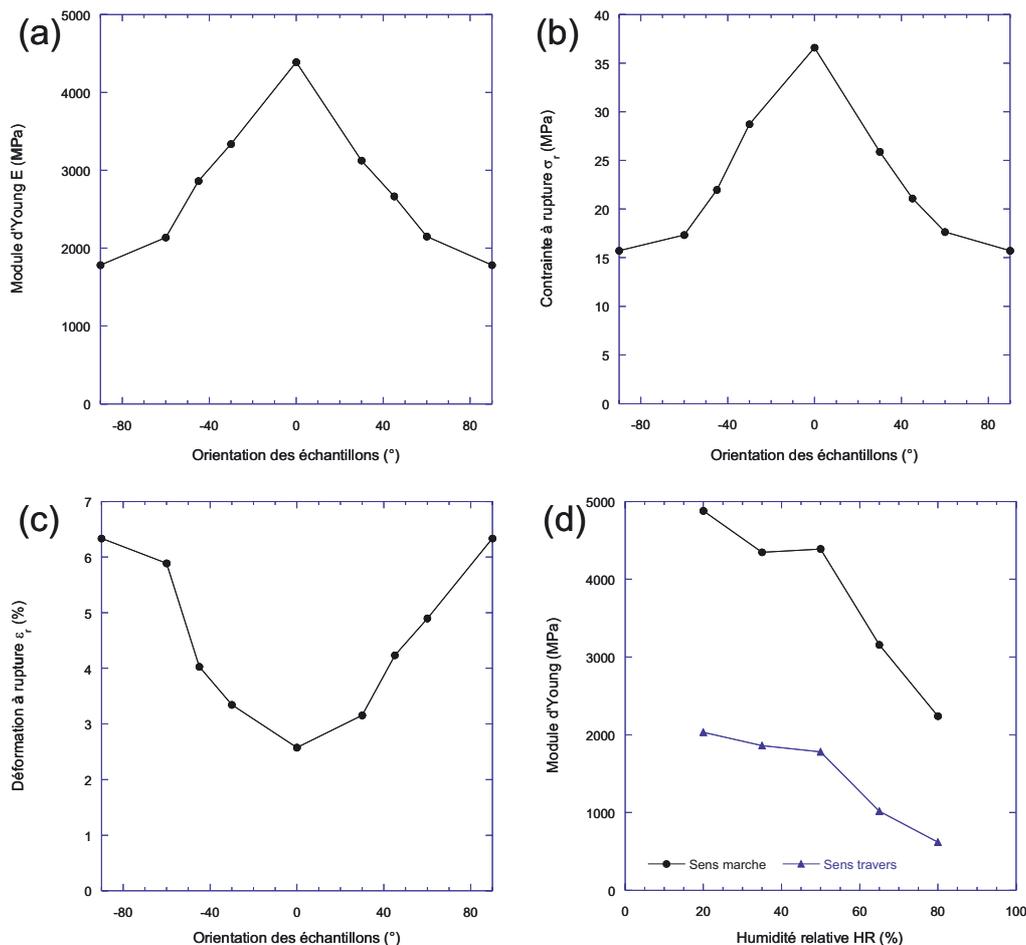
**Fig. 2.** (a) Courbe typique d'un essai de traction (vitesse de déformation axiale de  $0,0017 \text{ s}^{-1}$ , échantillon prélevé sens marche au centre de la laize,  $T = 24,5 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $HR = 50 \%$ ) où sont indiqués le module de Young  $E$ , la déformation à rupture  $\epsilon_r$  et la contrainte à rupture  $\sigma_r$ . (b) Évolution du module de Young  $E$ , (c) de la contrainte à rupture  $\sigma_r$ , (d) de la déformation à rupture  $\epsilon_r$  le long de la laize, marques : résultats expérimentaux et ligne continue : courbe de tendance ( $T = 24,5 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $HR = 50 \%$ ).

de  $79,9 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  (mesuré selon la norme NF Q 03 019). Les éprouvettes sont découpées dans cette laize dans le « sens marche » (sens de production du papier sur la machine à papier), le « sens travers » (direction transversale au sens marche) ainsi que dans des directions intermédiaires dont les angles d'orientation sont les suivants  $\pm 60^\circ$ ,  $\pm 45^\circ$  et  $\pm 30^\circ$ . Ces éprouvettes sont conditionnées à 50 % d'humidité relative et à  $24,5 \text{ }^\circ\text{C}$  avant essais.

## 2 Comportement en traction simple à humidités relatives constantes

Des essais de traction simple ont été réalisés à vitesse de déformation constante ( $0,0017 \text{ s}^{-1}$ ) sur une machine de traction mécanique (Instron 4501) équipée d'une enceinte climatique avec régulation de température et d'humidité relative de l'air. Les éprouvettes utilisées avaient une longueur utile de 100 mm et une largeur de 15 mm. Les essais ont été réalisés à une température

de  $24,5 \text{ }^\circ\text{C}$ , à des Humidités Relatives ( $HR$ ) de l'air constantes de 20 à 80 % et dans toutes les directions citées ci-dessus. La figure 2a donne l'allure d'une courbe contrainte-déformation de traction pour un échantillon prélevé dans le direction sens marche au centre de la laize. Sur ce graphique, les grandeurs typiques comme le module de Young  $E$ , la déformation  $\epsilon_r$  et la contrainte  $\sigma_r$  à la rupture sont définies. Les figures 2b–2d montrent respectivement l'évolution de ces grandeurs pour des éprouvettes, prélevées selon le sens marche, en fonction de leur position sur la laize. Ces figures mettent en évidence l'hétérogénéité du comportement du matériau à l'échelle de la laize. Ces hétérogénéités sont concentrées principalement sur les bords de cette dernière. Elles sont en général reliées à de forts gradients de propriétés microstructurales qui apparaissent au cours de l'opération unitaire de séchage en raison de conditions de maintien évolutives le long de la laize. Ceci aurait en effet pour conséquence d'entraîner des retraits hétérogènes [1]. L'existence de forts gradients des propriétés mécaniques sur les bords de la laize peut provoquer l'apparition de défauts de types



**Fig. 3.** (a) Module de Young, (b) contrainte à rupture, (c) déformation à rupture mesurés sur des éprouvettes présentant différentes orientations (sens marche =  $0^\circ$ ,  $T = 24,5^\circ\text{C}$ ,  $HR = 50\%$ , centre de la laize). (d) Influence de l'humidité relative de l'air ( $HR = 20, 35, 50, 65$  et  $80\%$ ) sur le module de Young  $E$  sens marche et sens travers ( $T = 24,5^\circ\text{C}$ , centre de la laize).

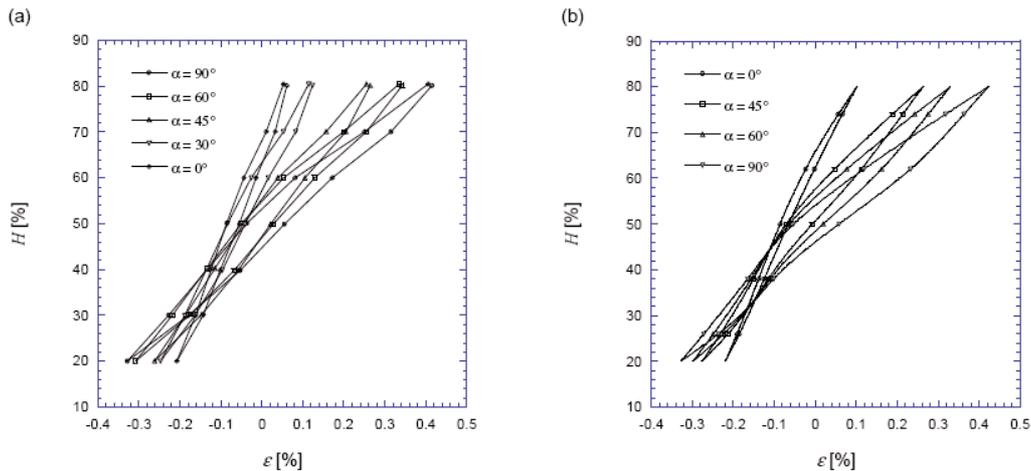
bords flottants, chevrons ou cloques. Ces défauts sont souvent responsables de problèmes de bobinage et de stabilité dimensionnelle du papier au cours de son impression.

Dans la suite, nous nous intéresserons essentiellement au comportement du papier pour des éprouvettes prélevées au centre de la laize, l'objectif étant de mettre en évidence l'influence de l'humidité et de l'anisotropie du papier. Les figures 3a–c montrent respectivement l'évolution du module de Young, de la contrainte de traction simple pour différentes orientations. Elles révèlent la forte anisotropie du comportement mécanique du papier, induite notamment par l'orientation de la microstructure fibreuse [3]. On remarquera par exemple que le module de Young  $E$  est deux fois plus élevé dans le sens marche que dans le sens travers (c'est-à-dire perpendiculairement à l'orientation privilégiée des fibres). La contrainte à rupture suit une évolution similaire tandis que la déformation à rupture est très faible sens marche ( $\approx 2,6\%$ ) par rapport à sa valeur sens travers ( $\approx 6,3\%$ ). La figure 3d souligne en outre la forte diminution des modules de Young mesurés sens marche et sens travers avec l'augmentation de l'humidité relative. On constate

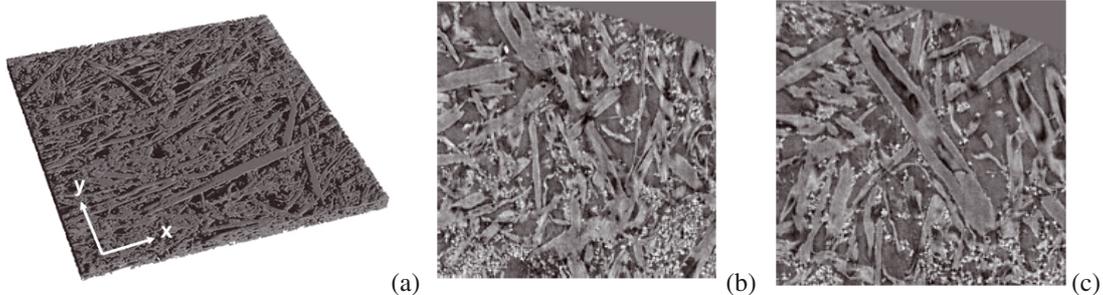
ainsi une diminution de l'ordre de 54 % (resp. 70 %) du module de Young sens marche (resp. sens travers) entre des mesures effectuées à des humidités relatives de 20 et de 80 %.

### 3 Variations dimensionnelles dans le plan dues à une modification d'humidité

Les variations dimensionnelles longitudinales dues à des variations d'humidité relative de l'air sont également mesurées, à l'aide d'un équipement spécialement conçu. Celui-ci permet de réaliser ces essais sur 10 éprouvettes rectangulaires d'une longueur utile de 150 mm, de manière simultanée. Un exemple de courbes typiques représentant l'humidité relative en fonction de la déformation axiale hygroscopique  $\epsilon^{hy}$  lors d'essais cycliques stabilisés est donné sur la figure 4a. Comme le montre cette figure, de fortes variations dimensionnelles comprises entre 0,2 et 0,7 % selon l'orientation sont observées pour un saut de 20 à 80 % de l'humidité



**Fig. 4.** (a) Courbes expérimentales donnant l'humidité relative en fonction de la déformation hygroexpansive obtenues pour des échantillons prélevés à différents angles d'orientation au centre de la laize (sens marche =  $90^\circ$ ), (b) prévision du modèle d'élasto-hystérésis.



**Fig. 5.** (a) Vue 3D ( $700 \times 700 \times 35 \mu\text{m}^2$ ) d'un échantillon du papier d'impression-écriture obtenue par microtomographie synchrotron (ESRF, ligne ID 19, taille de voxel égale à  $0,7 \mu\text{m}$ ), (b) vue d'une coupe du même échantillon à une hauteur  $z$  donnée, conditionné à  $T = 24,5^\circ\text{C}$  et à une humidité relative de 20 %, (c) vue d'une coupe de cet échantillon à la même hauteur  $z$ , après conditionnement à  $T = 24,5^\circ\text{C}$  et à une humidité relative de 80 %.

relative. En outre, le comportement d'hygroexpansion des papiers est non-linéaire, présente une hystérésis non négligeable et est fortement anisotrope. La figure 4b présente une première tentative de modélisation de ce phénomène basée sur une simplification des travaux issus de la littérature [4].

#### 4 Caractérisation tridimensionnelle à l'échelle microscopique par microtomographie synchrotron

La microtomographie synchrotron est utilisée désormais classiquement pour l'étude des microstructures des matériaux. Cette technique a été plus particulièrement appliquée dans le secteur papetier comme illustré dans [5–7]. La figure 5 montre des exemples d'images issues de la microtomographie du papier d'impression-écriture étudié. On notera en particulier que la totalité de l'épaisseur ne réagit pas de façon similaire à une variation d'humidité en raison essentiellement de

l'hétérogénéité du matériau. Ces images sont actuellement analysées plus finement à l'aide d'outils de mesure de champs cinématiques, l'objectif étant de corréler les variations dimensionnelles microscopiques à celles observées à l'échelle de la laize, c'est-à-dire l'échelle macroscopique (voir ci-dessus).

#### 5 Conclusions

L'étude expérimentale s'est principalement intéressée aux caractéristiques mécaniques d'un papier d'impression-écriture, en particulier au module de Young, à la contrainte et à la déformation à la rupture. Les essais ont montré l'hétérogénéité des résultats, en particulier aux bords des laizes. Des échantillons découpés selon différentes directions ont permis de vérifier de façon quantitative l'anisotropie mécanique du papier testé. Par ailleurs, on a montré qu'augmenter l'humidité relative a un effet considérable sur la diminution des propriétés mécaniques. Les phénomènes d'hygroexpansion de ce

papier ont également été étudiés. Des cycles d'humidité ont permis de mettre en évidence un phénomène d'hystérésis sur l'hygroexpansion dans son plan. Enfin, la microtomographie synchrotron s'avère être un outil particulièrement performant pour suivre l'hygroexpansion selon son épaisseur, mais également les micromécanismes de déformation liés à ces phénomènes.

## Références

- [1] I. Kajanto, K. Niskanen, Dimensional stability, in Paper Physics, in K. Niskanen (éd.), published by F. Oy, Helsinki, Finlande, 1998, pp. 222–259
- [2] T. Uesaka, Dimensional stability and environmental effects on paper properties, in Handbook of physical testing. Second edition, Revised and Expanded, in R.E. Mark, C.C. Habeger, J. Borch, B. Lyne (éd.), published by M. Dekker, Inc., Vol. 1, 2002, pp. 115–171
- [3] J.-F. Bloch, G. Champon, Anisotropy of Paper: Comparison of different laser tools, Optical diagnostic Methods for Inorganic Materials II, Proceedings of SPIE, San Diego, USA, Vol. 4103, 2000, pp. 106–115
- [4] J. Guélin, J. Mécanique 19 (1980) 217
- [5] S. Rolland du Roscoat, J.-F. Bloch, X. Thibault, Synchrotron radiation microtomography applied to paper investigation, J. Phys. D: Appl. Phys. 38 (2005) A78–A84
- [6] S. Rolland du Roscoat, J.-F. Bloch, X. Thibault, Characterisation of the 3D paper structure with X-Ray Synchrotron radiation microtomography, in The Sciences of Papermaking, in C.F. Baker (éd.), 2005, The Pulp and Paper Fundamental Research Society: Lancashire, 13th Fundamental Research Symposium, Cambridge, tome 2, 2005, pp. 901–920
- [7] S. Rolland du Roscoat, M. Decain, X. Thibault, C. Geindreau, J.-F. Bloch, Estimation of microstructural properties from synchrotron X-ray microtomography and determination of the REV in paper materials, Acta Mater. 55 (2007) 2841–2850