

Impact de l'humidité sur les pertes dans les papiers en radiofréquences et térahertz.

C. Guers¹, P. Martinez³, P. Huber³, P. Xavier², T-P. Vuong², F. Garet¹.

¹IMEP-LAHC, UMR CNRS 5130, Université de Savoie, 73376 Le Bourget du Lac Cedex, France.

²IMEP-LAHC UMR CNRS 5130, Université Grenoble Alpes, 38016 Grenoble Cedex 1, France.

³Centre technique du papier, Domaine universitaire CS 90251, 38044 Grenoble Cedex 9, France.

Cyril.guers@univ-smb.fr

Résumé – Nous présentons dans cet article une étude de la contribution de l'eau aux permittivités réelle et imaginaire des matériaux cellulosiques tels que le papier, dans deux domaines de fréquences d'intérêt en termes applicatifs : le domaine des ondes radiofréquences et térahertz. Nous montrons notamment que la présence d'eau dans le papier peut conduire à une augmentation des pertes significative.

1. Introduction

L'utilisation des matériaux cellulosiques et plus particulièrement des papiers offrent de nombreuses possibilités pour des applications en radiofréquence (RF) [1] et térahertz (THz) [2]. Cependant, à ces fréquences, le papier présente d'importantes pertes diélectriques ($\tan \delta \sim 2 \cdot 10^{-1}$ @ 900 MHz et une absorption de l'ordre de 10^1 cm^{-1} à un THz). Celles-ci sont imputables à un certain nombre de phénomènes tels que la diffusion des fibres de cellulose [3], la présence d'adjuvants, la polarité de la molécule de cellulose [4], le type de cellulose [5] ou encore l'eau contenue dans les papiers. Ce travail propose d'étudier l'impact du taux d'humidité de l'air ambiant sur les pertes dans les papiers dans deux plages de fréquences RF (900 MHz et 2,45 GHz) et THz (300 GHz à 1200 GHz) choisies pour leurs intérêts en termes d'applications potentielles.

2. Echantillons et principes expérimentaux

Pour cette étude, quatre papiers ont été sélectionnés : un papier « buvard » (70 g/m², 115 μm), un papier « standard » (80g/m², 110 μm), un papier « standard » plus épais (160 g/m²) et un papier calque (115 μm). Le papier buvard est constitué essentiellement de fibres cellulosiques. Les papiers standards sont composés de 85 % de fibres cellulosiques (dont 80% de fibres courtes et 20 % de fibres longues) et de 15% de charges minérales (50% de CaCO₃ et 50% de Kaolin). Enfin, le calque est composé en très grande majorité par de la cellulose qui a subi un raffinage extrême conduisant à une déstructuration des fibres. Dans le domaine RF, les échantillons ont été mesurés à l'aide de deux cavités résonantes [6] aux fréquences 900 MHz et 2.45 GHz associées à un analyseur de réseau vectoriel (VNA). Pour l'analyse THz, nous avons mis en œuvre une technique

large bande de type spectroscopie Térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) en transmission [7] permettant de caractériser les échantillons entre 100 GHz et 2 THz. Une étude préliminaire a permis de déterminer le pourcentage d'eau dans les papiers en fonction du taux d'humidité de l'air. Pour ce faire, la masse des échantillons, placés dans une enceinte contrôlée en humidité, a été mesurée pour des taux d'humidité variant entre 0 à 90 %. La figure 1 présente l'évolution du pourcentage d'eau dans le papier (%_{H₂O}) en fonction de l'humidité de l'air. Les résultats ont été obtenues en appliquant l'équation 1 :

$$\%_{H_2O} = \frac{m_x - m_0}{m_x} \quad (1)$$

où m_x est la masse à x% d'eau et m_0 la masse sèche.

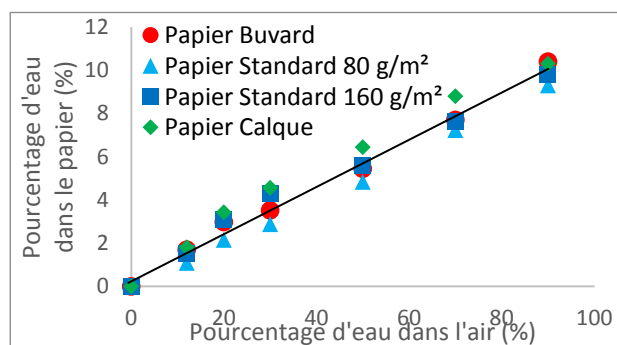


Figure 1: Teneur en eau du papier en fonction du taux d'humidité ambiant.

Les différents papiers présentent des comportements très similaires. Ainsi la présence de charges minérales ou le raffinage n'a pas d'effet notable sur le taux d'absorption de l'humidité ambiante. L'eau contenue dans le papier dépend linéairement de l'eau dans l'atmosphère. La quantité d'eau dans le papier varie de 0% de la masse totale du papier pour une atmosphère extra sèche à 10-12% pour une atmosphère avec 90 % d'humidité.

3. Mesures en térahertz et radiofréquence.

3.a. Résultats dans le domaine THz.

La figure 2 présente les résultats de mesure du spectre d'absorption du papier buvard avec deux taux d'humidités dans le domaine THz. L'échantillon a été

mesuré pour différents taux d'humidité de l'air (10 et 90%), tandis que le faisceau THz, très sensible à la vapeur d'eau, a été isolé de l'air ambiant par un flux d'azote. On peut observer que, comme attendu, l'absorption augmente continûment avec la fréquence. De plus, le papier buvard à 90% d'humidité ambiante présente une absorption notablement plus importante que pour une humidité atmosphérique de 10%. En effet, l'eau présente une absorption très importante dans le domaine térahertz, de l'ordre de 60 cm^{-1} à 300 GHz et de 230 cm^{-1} à 800 GHz [8]. Ainsi, plus l'eau est absorbée par le papier, plus les pertes seront importantes. Ici, entre une teneur en eau de 15%, correspondant à une humidité ambiante de 90%, et un papier composé d'un pourcentage d'eau, l'absorption du papier a doublé.

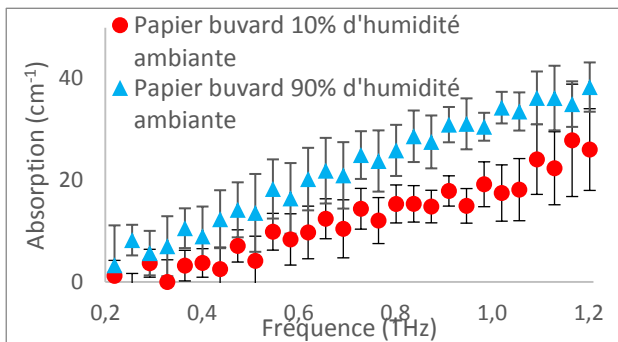


Figure 2 : Absorption du papier buvard à 10 et 90% d'humidité dans l'air en fonction de la fréquence.

La figure 3 présente les pertes mesurées à 850 GHz sur les quatre papiers précédents, en fonction du taux d'humidité contenue dans le matériau. Les traitements mécaniques, l'épaisseur ou encore les charges insérées ne modifient pas drastiquement le comportement des pertes dans les papiers lorsque l'humidité varie. Les différents échantillons présentant donc des résultats similaires sur l'étude de l'humidité, la suite de l'étude sera concentrée sur celle du papier buvard, qui pourra ensuite être étendue aux autres.

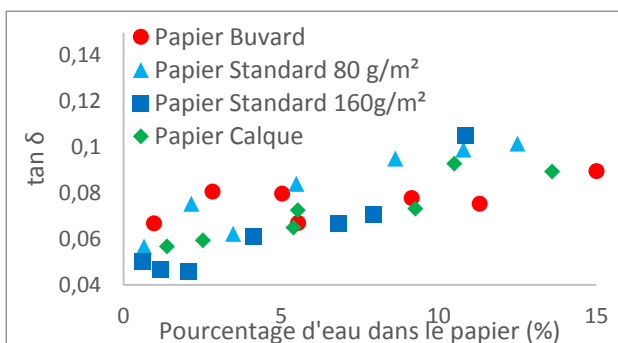


Figure 3 : Tangente de perte de quatre papiers en fonction de leur concentration en eau à 850 GHz.

La figure 4 représente les résultats sur la permittivité réelle du papier buvard pour deux fréquences d'études, 450 et 1200 GHz. Nous pouvons, dans un premier temps, observer une augmentation significative de la permittivité du papier en fonction de l'humidité. La permittivité de l'eau liquide dans notre domaine d'étude

étant de l'ordre de 5 [9], il est normal que la permittivité du mélange papier «sec»-eau augmente lorsque l'eau est plus importante.

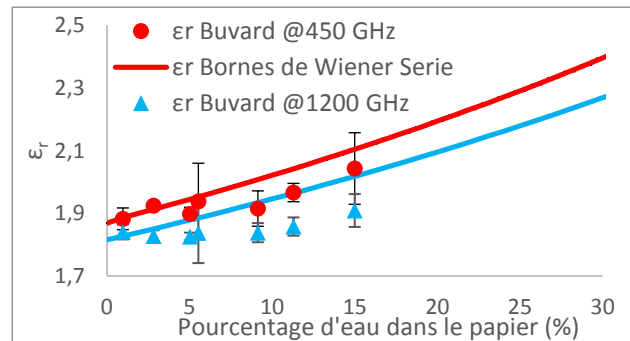


Figure 4 : Permittivité réelle du papier buvard à 450 et 1200 GHz en fonction du pourcentage d'eau dans le papier et comparaison au modèle de milieu effectif de Wiener.

Afin de comprendre plus précisément le comportement des papiers en fonction de la teneur en eau nous avons appliqué différents modèles de milieu effectif à nos résultats de mesures. Nous avons considéré le matériau papier comme un mélange simple à deux composants : papier «sec» et eau. Le modèle que nous avons donc retenu est le modèle de Wiener. Ce modèle est un modèle électrique dont les constituants du mélange sont assimilés à une succession de couches formant des capacités successives mises en série, le champ électrique étant par ailleurs considéré orthogonal aux couches. L'expression de la permittivité du milieu effectif ϵ_{eff} est alors donnée par l'équation 2 :

$$\frac{1}{\epsilon_{eff}} = \frac{1 - \varphi_2}{\epsilon_1} + \frac{\varphi_2}{\epsilon_2} \quad (2)$$

où ϵ_1 et ϵ_2 sont les permittivités des matériaux du mélange et φ_2 la proportion du matériau 2.

L'évolution de la permittivité observée expérimentalement est qualitativement reproduite par le modèle, pour une concentration en eau du papier jusqu'à 15%. D'un point de vue quantitatif, l'accord reste satisfaisant. De plus, cette concentration ne peut, dans la pratique, pas excéder une humidité interne supérieure à 20% à 20 °C ; il nous est donc impossible de vérifier si cet accord sur la tendance, reste valide au-delà de cette valeur limite.

Une analyse similaire a été effectuée sur la tangente de perte diélectrique $\tan \delta$ du papier buvard en fonction de l'humidité interne. Les résultats expérimentaux à 1200 GHz suivent très correctement encore une fois le modèle, tandis que l'on peut observer un désaccord notable à 450 GHz. Le modèle de milieu effectif permet là encore de rendre compte de l'évolution de $\tan \delta$ en fonction de la teneur en eau du papier. Compte tenu des incertitudes sur les mesures, le désaccord visuellement observable sur les mesures @450 GHz n'est pas véritablement significatif. L'une des raisons pouvant expliquer ce relatif accord entre modèle de milieu effectif et mesure peut être dans les hypothèses que nous avons retenues.

En effet, le modèle utilisé est limité à deux composants ; une étude est en cours pour évaluer l'effet de la prise en compte d'un troisième élément : l'air. De plus, les

modèles de milieu effectif ne rendent pas compte des effets physiques et chimiques d'une possible interaction entre les composants. Considérer ces milieux du papier comme dissociés reste une hypothèse à vérifier car le motif de répétition de la cellulose constituant le papier permet l'accès à trois sites de groupements O-H. Ces groupements O-H peuvent interagir physiquement avec l'oxygène de la molécule d'eau pour former des liaisons hydrogènes et vice-versa. Le mélange papier/eau se trouverait ainsi hors limite de validité des modèles de milieux effectifs.

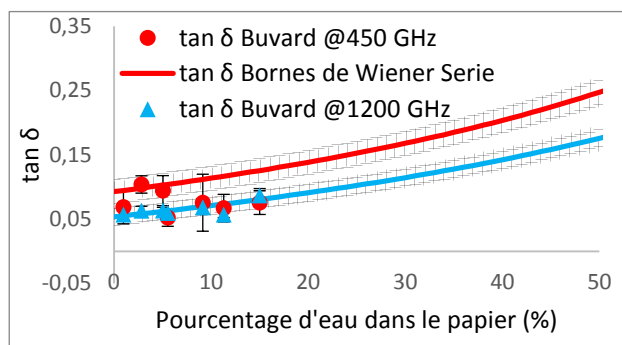


Figure 5 : Tangente de perte du papier buvard à 450 et 1200 GHz en fonction du pourcentage d'eau dans le papier et comparaison au modèle de milieu effectif de Wiener.

Toutefois, les résultats de cette étude montrent que, dans le cas du papier buvard à 1200 GHz par exemple, les valeurs entre les pertes entre 1 et 5,5% de teneur en eau (correspondant à des taux d'humidité de l'air de respectivement 10% et 40%) sont doublées. Ainsi, pour un taux d'humidité « ordinaire » (environ 40-50%), 50% des pertes mesurées sont imputables à l'eau contenue dans le papier, cette proportion pouvant monter à 75% dans une atmosphère très humide. Toute tentative de réduire les pertes dans les matériaux cellulosiques, pour des utilisations aux fréquences THz, sans solution pour limiter voire interdire l'absorption de l'humidité de l'air par le papier sera donc vouée à l'échec.

3.a. Résultats dans le domaine RF.

Une étude similaire à la précédente, menée dans le domaine THz, a été réalisée dans le domaine RF, plus particulièrement autour de deux fréquences d'intérêt : 900 MHz et 2.45 GHz. L'évolution des pertes ($\tan \delta$) en fonction de la teneur en eau est tracée sur la figure 6, à 900 MHz. Sur cette figure sont présentés les résultats pour les quatre papiers de notre étude.

Pour les quatre matériaux et comme attendu, on peut observer la même tendance, à savoir une augmentation rapide de $\tan \delta$ avec le pourcentage d'eau dans le matériau. En effet, dans ce domaine de fréquence, l'eau pure présente une tangente de perte de l'ordre de 10^{-1} (@ 1 GHz) [10], bien supérieure à celle du papier «sec». Sa présence dans le papier est donc au moins aussi impactante que dans le domaine THz précédemment étudié. On peut, par ailleurs, noter que ϵ' (non présenté ici) présente le même type de comportement.

En RF, l'impact de l'humidité sur ϵ' et $\tan \delta$ est beaucoup plus important que dans le domaine des THz.

L'eau augmente les phénomènes de relaxations dues à la polarisation ce qui se traduit par une augmentation drastique et rapide des pertes.

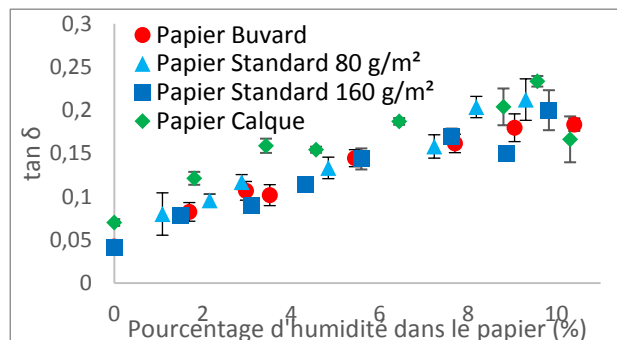


Figure 6: Tangente de perte de quatre papiers en fonction de leur pourcentage en eau à 900 MHz

La figure 7 représente l'évolution de la permittivité réelle du papier buvard en fonction du taux d'humidité interne au matériau à 900 MHz (résultats similaires à 2,45 GHz). Comme décrit précédemment, la permittivité augmente avec la teneur en eau. Afin de pouvoir modéliser cette évolution, les résultats ont été comparés avec des modèles de milieux effectifs. Parmi tous les modèles étudiés nous avons retenu le modèle de Lichtenecker et Rother (équation 3) pour un système désordonné où $k=0$ (variable spécifique à la géométrie du système).

$$\epsilon_{\text{eff}} = \epsilon_1^{\varphi_2} \cdot \epsilon_2^{(1-\varphi_2)} \quad (3)$$

où ϵ_{eff} est la permittivité effective du mélange, ϵ_1 la permittivité du papier «sec», ϵ_2 la permittivité de l'eau libre ou liée en radiofréquence et φ_2 le pourcentage d'eau dans le mélange.

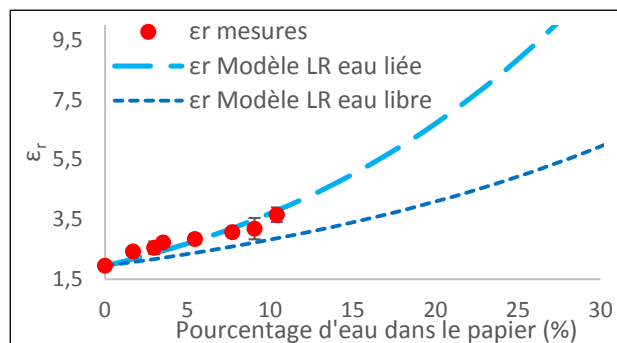


Figure 7: Permittivité réelle du papier buvard à 900 MHz en fonction du pourcentage d'eau dans le papier et comparaison au modèle de milieu effectif de Lichtenecker et Rother. Deux type de limite ont été étudié, les limites de l'eau liée et de l'eau libre.

Bien que les premières simulations, sur la permittivité réelle, donnent des résultats encourageant, le modèle tel quel, utilisant la permittivité de l'eau libre, est dans l'incapacité de décrire l'évolution des pertes (figure 8). En effet, les paramètres utilisés pour décrire les propriétés diélectriques de l'eau en radiofréquences ne rendent pas compte totalement de la physique du problème. En radiofréquence, comme nous l'avons expliqué plus haut, la polarisation joue un grand rôle sur les pertes. Or, la cellulose et l'eau peuvent former des

liaisons hydrogène, exacerbant le phénomène de relaxation. Les propriétés diélectriques de l'eau libre ne conviennent pas à l'étude sur de l'eau liée physiquement à la cellulose.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons donc comparé nos résultats à deux modélisations utilisant différentes définitions des propriétés diélectriques de l'eau. Il a été montré en RF [11], que l'eau à l'interface d'un autre matériau pouvait avoir une permittivité réelle bien inférieure que celle de l'eau libre ($\epsilon_r \sim 2$). Aucune donnée n'a par ailleurs été publiée sur la valeur de la permittivité imaginaire pour l'eau liée. Nous avons donc utilisé $\tan \delta$ comme paramètre permettant d'ajuster au mieux les résultats expérimentaux.

Ainsi, nous pouvons observer sur les figures 7 et 8 que le modèle de LR utilisant les paramètres de l'eau liée est en bon accord avec les résultats de mesure. Bien que ne prenant pas en compte les interactions physiques du mélange, le modèle a cependant donné des résultats représentatifs du comportement observé.

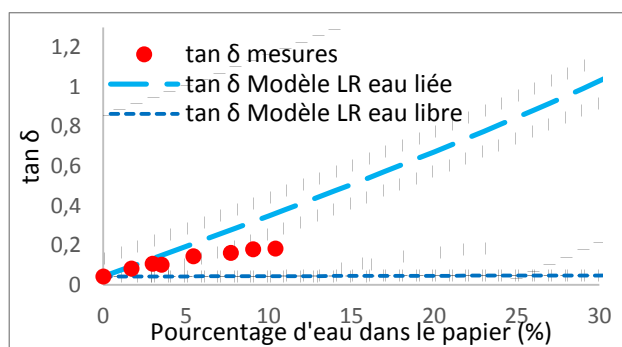


Figure 8 : Tangente de perte du papier buvard à 900 MHz en fonction du pourcentage d'eau dans le papier et comparaison au modèle de milieu effectif de Lichtenecker et Rother. Deux limites ont été étudiées, celle de l'eau liée et de l'eau libre.

Par ailleurs, plus le taux d'humidité augmente, plus la quantité de liaison entre l'eau liée et la cellulose augmente. Pour un taux d'humidité maximal dans l'atmosphère, l'eau ne peut plus se fixer à la cellulose faute de site disponible. La quantité d'eau libre augmente alors dans le mélange. Ce phénomène n'a pas pu être mis en évidence lors de nos mesures. Afin de l'observer, une étude complémentaire qui nécessitera vraisemblablement une mise en présence du papier avec de l'eau liquide est en cours.

4. Conclusion

Nous avons montré dans cette étude que les papiers réagissaient de manière similaire quel que soit leur agencement physique ou chimique et le comportement est donc principalement gouverné par la cellulose. L'eau contenue dans le papier contribue notablement à l'augmentation des pertes dans le matériau mesuré puisque plus de 50% des pertes, suivant les fréquences considérées, sont imputables à l'eau absorbée. Les autres sources de pertes que nous avons citées dans l'introduction ne pourront donc pas être étudiées sans avoir retiré cette contribution de l'eau aux pertes diélectriques. Il faudra donc à termes, annihiler cet

échange fibres/eau pour tout prototype de dispositif RF ou THz. Des modèles de milieux effectifs ont été introduits pour décrire le comportement des papiers en fonction de leur teneur en eau pour les deux plages de fréquences. Les raisons expliquant le relatif accord des modèles avec les résultats expérimentaux sont en cours d'investigation.

5. Remerciements

Cette étude est financée par l'Agence Nationale de la Recherche dans le cadre du programme de recherche collaborative-entreprise (Projet MACEO n° ANR-15-CE08-0014). Nous remercions nos partenaires le CTP et Arjowiggins pour nous avoir fourni les échantillons pour notre étude.

Références

- [1] F. Debarros et al., "MetaPaper: Cellulose Wallpaper for WiFi and GSM electromagnetic waves filtering," in *Proceedings of the Large-area Organic & Printed Electronics Convention (LOPE-C)*, 28-30 June, 2011, pp. 1-5.
- [2] M. Hamdi, "Conception de tags d'identification sans puce dans le domaine THz," phdthesis, University Grenoble Alpes, 2014.
- [3] F. Garet et al. "Evidence of Mie scattering at terahertz frequencies in powder materials," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 3, p. 31106, Jul. 2014.
- [4] A. Ozawa et al., "Electrical conduction and polarization in cellulose in relation to its water content," in *Proceedings of the 3rd International Conference on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics*, pp. 15-19, 1989.
- [5] A. Franchois et al., "Microwave permittivity measurements of two conifers," *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, vol. 36, no. 5, pp. 1384-1395, Sep. 1998.
- [6] A. Parkash, et al., "Measurement of Dielectric Parameters at Microwave Frequencies by Cavity-Perturbation Technique," *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 27, no. 9, pp. 791-795, Sep. 1979.
- [7] M. van Exter et al., "Characterization of an optoelectronic terahertz beam system," *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 38, no. 11, pp. 1684-1691, Nov. 1990.
- [8] T. Suzuki et al., "Measurement of water absorption coefficient using terahertz time-domain spectroscopy," in *34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2009. IRMMW-THz 2009*, pp. 1-2, 2009.
- [9] Payam Mousavi, "Material Composition Analysis Using Time-Domain Terahertz Spectroscopy.," phdthesis University of British Columbia, 2014.
- [10] R. Buchner et al., "The dielectric relaxation of water between 0°C and 35°C," *Chem. Phys. Lett.*, vol. 306, no. 1-2, pp. 57-63, June 1999.
- [11] B. L. Good et al., "Validation of C-Band Permittivity of Fresh Water using Periodic Jets,"

IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett., vol. 14, pp.
891–894, 2015.