

Caractéristiques papetières de la pâte de bois de thuya de Berbérie (Algérie) (*Tetraclinis articulata* Vahl) obtenue par un procédé soude-anthraquinone

Ahmed HADDAD^a, Dominique LACHENAL^b, Alain MARECHAL^b, Meriem KAID-HARCHE^c,
Gérard JANIN^{d*}

^a Département de Foresterie, Faculté des sciences, Université de Tlemcen, Algérie

^b LGP2 – E.F.P.G. 461, rue de la Papeterie, BP 65, 38402 St Martin d'Hères, France

^c Département de Biotechnologie, Université d'Oran (USTO), Algérie

^d CRF-INRA, 54280 Champenoux, France

(Reçu le 26 avril 2005 ; accepté le 12 décembre 2005)

Résumé – Le thuya de Berbérie « *Tetraclinis articulata* Vahl », espèce résineuse endémique d'Afrique du Nord se trouve généralement sous forme de taillis. La valorisation de la biomasse de thuya, et en particulier de son bois peut être envisagée par la filière papetière par le biais d'une cuisson soude en présence d'anthraquinone (AQ). Le bois jeune de thuya (20 ans) se délignifie bien à l'aide d'une cuisson soude-anthraquinone dans les conditions habituellement appliquées aux résineux avec un temps total de cuisson de 145 min et une température de palier de 165 °C. Le rendement brut obtenu est égal à 43,3 % avec un indice Kappa de 33,6. Dans les mêmes conditions de cuisson, le bois âgé (60 ans) peut être lessivé mais se délignifie moins facilement.

thuya / délignification / soude-anthraquinone / rendement / indice Kappa

Abstract – Characteristics of the pulp and paper of “thuya de Berbérie“ (Algeria) (*Tetraclinis articulata* Vahl) obtained by soda-antraquinone process. The coniferous trees of the *thuya de Berbérie* (*Tetraclinis articulata* Vahl), from the North Africa (Algeria) is commonly grown as a coppice stand. The biomass of thuya, and especially its wood, can be transformed in pulp by the paper and pulp industry throughout the soda cooking process with the help of the anthraquinone (AQ). The young wood (20 years-old) is well delignified in the soda-anthraquinone process, in the usual conditions applied to the resinous species, in the cooking time schedule of 145 min with the level of 165 °C of temperature. The pulp yield of raw material obtained is 43.3% (oven dried wood), with a kappa number of: 33.6. In the same cooking conditions, the mature wood (60 years-old) can be also treated, but with some lower delignification level.

thuya / delignification / soda-anthraquinone / pulp yield / Kappa number

1. INTRODUCTION

Le thuya de Berbérie (*Tetraclinis articulata* Vahl), espèce résineuse de la famille des Cupressacées, constitue un élément important de la végétation Nord africaine (Maroc, Algérie, Tunisie), puisqu'il couvre plus d'un million d'hectares [2]. En Algérie, il occupe une superficie estimée à 160 000 ha, localisée en majorité dans la région ouest du pays [3]. La quasi-totalité des peuplements se présente sous forme de taillis. C'est l'un des rares résineux capable de rejeter sur souche. La densité des peuplements varie suivant les milieux entre 1000 et 8000 tiges/ha. Leur âge s'échelonne entre 10 à 60 ans avec un accroissement moyen en volume possible de 2 à 3 m³/ha/an dans les meilleures stations [2]. Le volume du matériel sur pied est estimé en moyenne à 40 m³/ha et le capital ligneux s'élève à 4 millions de mètre cube à l'échelle du pays, mobi-

lisables à l'occasion des opérations d'entretien « éclaircies ou recépages » de ces taillis.

Dans la perspective d'une valorisation totale des ressources ligneuses et en particulier la biomasse des taillis de thuya, une utilisation papetière de ces petits bois peut être envisagée par le biais d'une cuisson alcaline dont le rendement avoisine 50 % par rapport au bois sec [12] et ce d'autant plus que l'industrie papetière offre actuellement la possibilité d'utilisation de bois de faibles dimensions comme toutes autres sources ligno-cellulosiques (déchets de bois, sciures, déchets agricoles...).

Dans cette optique, il est mis en œuvre une cuisson du bois de thuya par le procédé soude-anthraquinone afin de déterminer le temps nécessaire « via une étude cinétique » pour sa délignification et évaluer son potentiel papetier par la détermination des principales caractéristiques de la pâte obtenue.

Le choix de l'anthraquinone vient des propriétés de cette quinone benzénique qui joue le rôle de pseudo-catalyseur pour

* Auteur pour correspondance : gejanin@free.fr

une délignification plus rapide et plus complète des parois des fibres des végétaux.

2. MATÉRIELS ET MÉTHODES

2.1. Description du bois de thuya

Suivant la zone dans laquelle ils croissent, les bois présentent des caractéristiques morphologiques et chimiques différentes. Par conséquent, il est nécessaire de donner une description du végétal qui a servi de support à cette étude, tant sur le plan de sa constitution chimique que morphologique.

Les tiges utilisées dans notre étude sont au nombre de 5, elles ont été prélevées dans la forêt domaniale de Taount commune de Gha-zaouat relevant du département de Tlemcen (Algérie) région située sur le littoral occidental, caractérisée par :

- Un étage bioclimatique semi aride à hiver frais ;
- Une altitude moyenne : 230 m ;
- Précipitation annuelle : 300–400 mm ;
- Température moyenne : 18 °C ;
- Sol brun calcaire.

Ces tiges présentent un diamètre moyen de 12 cm et ont été écorcées ; elles possèdent un taux d'écorces de 8 à 9 % en masse ce qui est faible pour un approvisionnement papetier en matière première.

2.2. Description morphologique

2.2.1. Aspect macroscopique

Le bois âgé comporte deux zones distinctes : l'aubier de couleur jaunâtre et le duramen de couleur brun rougeâtre. Les zones d'accroissements annuels ou « cernes » très serrés sont peu distinctes (Fig. 1). Dans les sujets jeunes, le duramen n'est pas présent. Le bois a une infradensité qui s'échelonne de 0,69 à 0,95 g/cm³ [5].

2.2.2. Aspect anatomique

Le bois de thuya, comme toutes les essences résineuses ou conifères, a une structure simple et homogène « structure homoxylée » [7]. Il est caractérisé par la présence de cellules, assurant le soutien et la conduction de la sève : les trachéides, munies de ponctuations aréolées. Les trachéides du bois de printemps ont une paroi mince et un lumen large. Les trachéides du bois d'été ont une section rectangulaire, à paroi épaisse et un lumen plus petit. Les trachéides ont une longueur qui varie de 0,8 à 2,7 mm et une épaisseur de la paroi variant entre 3 et 10 µm.

Les rayons ligneux sont unisériés, très rarement bisériés partiellement, hauts de 1 à 8 cellules et très exceptionnellement jusqu'à 15 par rayon, le nombre moyen des rayons ligneux est de 32 par mm².

Le parenchyme axial est disséminé et les trachéides horizontales sont absentes. Les champs de croisement contiennent de 1 à 3 ponctuations, de forme arrondie ou elliptique.

Les canaux résinifères sont absents du bois de thuya ; ils sont localisés dans l'écorce dégageant une résine d'odeur très caractéristique.

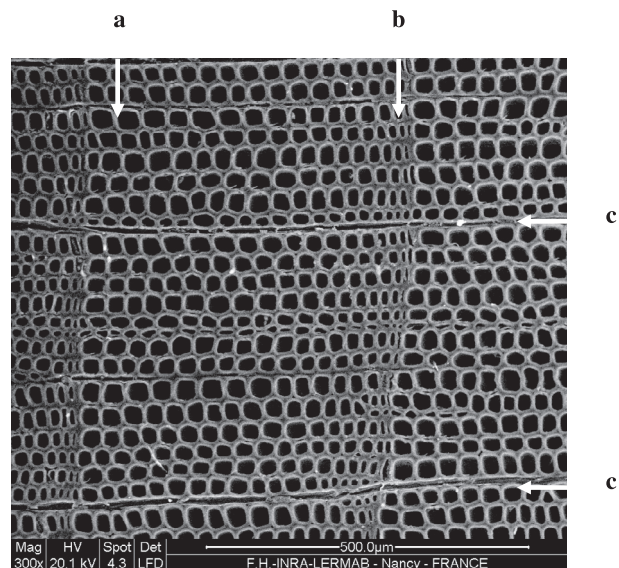


Figure 1. Section transversale du bois de *Tetraclinis articulata* Vahl. Image d'un accroissement annuel complet (largeur 0,5 mm) avec son bois initial (a), son bois final (b) et ses rayons ligneux (c) ; image en microscopie électronique à balayage environnementale (F. H., Lermab).

2.3. Composition chimique

L'analyse chimique du bois de thuya par les méthodes classiques d'analyse [1, 4] a abouti aux résultats rassemblés dans le tableau I.

Les normes des essais de détermination de la composition chimique du bois sont les normes françaises suivantes :

- Taux de lignine résiduelle (méthode de Noll) ;
- Indice de furfural et taux de pentosanes (NF T 12-008) ;
- Degré de polymérisation viscosimétrique, DPv (NF T 12-005) ;
- Longueur moyenne des fibres (appareil Kajaani FS-100).

Le bois de thuya présente une composition chimique qui l'apparente bien aux bois résineux mais avec une teneur en lignine plus élevée (35 à 40 %). La teneur en lignine pour les résineux courants est comprise entre 25 et 30 % [3].

Le bois du duramen de thuya âgé contient plus de lignine, d'extraits aux solvants organiques et moins de pentosanes que son aubier. Le bois jeune a une composition semblable à celle de l'aubier d'un arbre âgé.

2.4. TRAITEMENT DE CUISSONS PAPETIÈRES

2.4.1. Préparation de l'échantillonnage du bois de thuya

Nous avons préparé 2 types d'échantillonnage de végétal. Le premier type pour des essais préliminaires de cinétique de délignification en laboratoire : avec du bois jeune et âgé sous forme d'allumettes d'épaisseur de 1 à 2 mm. Le second type pour les essais normalisés en multi-obus : sous forme de copeaux de bois de cœur et d'aubier aux dimensions suivantes en mm : longueur = 25 à 35 mm, largeur = 5 à 6 mm, épaisseur = 4 à 5 mm.

Tableau I. Composition chimique du bois de thuya de Berbérie.

Constituants en % (par rapport au bois sec)	Bois âgé			Bois jeune
	Aubier	Duramen	Moyenne*	
Extrait eau	3,4	1,7	2,0	3,2
Extrait alcool/toluène	2,3	7,3	6,7	2,1
Cellulose de Kurschner et Hoffner	41,3	40,1	40,3	41,5
Lignine de Noll	36,1	41,2	40,1	35,7
Indice de furfural	7	5,5	5,8	7,1
Taux de pentosanes	11,9	9,4	9,9	12,1
Taux de cendres	0,27	0,3	0,29	0,28

* Moyenne calculée sur la base de la proportion de l'aubier et duramen.

2.4.2. Procédé de cuisson utilisé

Le procédé chimique mis en œuvre dans cette étude pour le traitement du bois de thuya est le procédé *soude-anthraquinone*. Il est admis que l'addition aux liqueurs de cuisson soude d'une quantité d'anthraquinone (AQ) de l'ordre de 0,05 à 0,25 % (par rapport au bois sec), donne par rapport à la soude seule une cinétique et une sélectivité de délignification bien plus élevées et une pâte de meilleure qualité [3, 4, 8]. Les autres types de cuisson Kraft donnent des résultats connus [6] et la cuisson au bisulfite (MgO , H_2SO_3 , SO_2) est inadaptée.

2.4.3. Cuissons papetières

Les cuissons papetières ont été faites dans un système rotatif composé de 6 obus d'une capacité unitaire de 1 L « système multi-obus », chauffés électriquement, disponible à L'EFPG à Grenoble. La montée en température est programmée par un système automatisé ; la mesure de température est faite à l'aide de thermocouples.

Les réactifs de cuisson ont été préparés juste avant usage pour éviter la carbonatation de la soude.

Après le temps de palier nécessaire, la réaction est arrêtée le plus rapidement possible par arrosage extérieur avec de l'eau froide, puis dégazage du réacteur.

Après le lavage, la pâte a subi les traitements suivants :

- Défibrage à l'aide d'un défibreux Sprout Waldron en deux passages avec écartement des disques de 25 centièmes de pouce, puis 10 centièmes de pouce ;
- Classage à l'aide d'un appareil Weverk (largeur des fentes = 0.15 mm), en recueillant la pâte sur un tamis muni d'une toile de 9 μm de vide de maille ;
- Raffinage au Lampen jusqu'à l'obtention d'un degré Shopper ($^{\circ}SR$) situé entre 37 et 45 $^{\circ}SR$;
- Tirage de formettes de 2 g à l'aide d'un appareil Frank Rapid Köthen de laboratoire.

La teneur en soude non consommée a été déterminée par dosage conductimétrique à l'aide d'une solution d'acide chlorhydrique titrée.

2.4.4. Caractérisation de la pâte et du papier

Les pâtes ont été caractérisées par les indices et les propriétés usuels utilisés dans le domaine des pâtes.

2.4.4.1. Caractéristiques physico-chimiques des pâtes

- Rendement brut ;
- Rendement net ;
- Taux de lignine résiduelle (méthode de Noll) ;
- Indice de furfural et taux de pentosanes (NF T 12-008) ;
- Degré de polymérisation viscosimétrique, DPv (NF T 12-005) ;
- Longueur moyenne des fibres (appareil Kajaani FS-100).

2.4.4.2. Caractéristiques physico-mécaniques

- Degré Schopper $^{\circ}SR$ (NF Q 50-003) ;
- Epaisseur (NF Q 03-016) ;
- Grammage (NF Q 03-019) ;
- Masse volumique (rapport entre le grammage et l'épaisseur en g/cm^3) ;
- Longueur de rupture L_r (NF Q 03-004) ;
- Indice d'éclatement I_e (NF Q 03-053) ;
- Indice de déchirement I_d (NF Q 03-001) ;
- Longueur de rupture à mâchoires jointives LR_0 : mesures réalisées sur des éprouvettes sèches.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Délignification et mise en pâte du bois de thuya

Avant d'étudier la cinétique de délignification du bois de thuya, un essai préliminaire comportant deux cuissons a été mené pour connaître la réactivité du bois âgé et celle du bois jeune vis-à-vis de la cuisson *soude-anthraquinone* dans les conditions spécifiées ci-après.

- Bois sous forme d'allumettes d'épaisseur de 1 à 2 mm ;
- Concentration NaOH : 20g/L ;
- Matière sèche : 40 g ;
- Rapport liqueur/bois (L/B) : 16 ;
- % Anthraquinone : 4 % ;
- Température de cuisson : 165 $^{\circ}C$;
- Temps de montée de la température : 60 min ;
- Durée du palier : 90 min ;
- Vitesse de montée en température (2,6 $^{\circ}C/min$).

Tableau II. Caractéristiques de la pâte en fonction du type de bois : âgé ou jeune.

Type de bois	Rendement brut (%)	Indice Kappa
Bois âgé (60 ans)	45,2	36,6
Bois jeune (20 à 25 ans)	49,6	26,8

Les résultats de cet essai (Tab. II) ont montré une nette différence entre les deux types de bois en regard des rendements bruts obtenus et des indices Kappa mesurés sur les deux pâtes (classées). Ce qui permet de conclure, comme le laissaient prévoir les résultats du tableau I, que le bois jeune présente une meilleure aptitude à la délignification et donne un rendement plus élevé que le bois âgé qui a une teneur initiale en lignine et en résine plus importante.

3.2. Cinétique de la délignification

Sur la base du résultat précédent, nous avons mené une étude de la cinétique de délignification afin de déterminer le temps optimal pour le défibrage du bois jeune de thuya.

3.2.1. Conditions de cuisson

Par rapport aux informations précisées dans la littérature sur la délignification des différentes espèces résineuses par le procédé *soude-anthraquinone*, nous avons choisi les conditions de cuisson suivantes :

- Bois sous forme de copeaux découpés aux dimensions suivantes en mm : longueur : 25 à 35 mm, largeur : 5 à 6 mm, épaisseur : 4 à 5 mm ;
- Concentration NaOH : 60 g/L ;
- Masse de bois sec : 120 g ;
- Rapport liqueur/bois (L/B) : 5 ;
- % Anthraquinone : 1,5 % ;
- Température de cuisson : 165 °C ;
- Durée du palier : variable ;
- Vitesse de montée en température (2,3 °C/min).

Le rapport (L/B) a été volontairement choisi élevé dans le but de prévenir une consommation importante possible d'alcali (soude). Le pourcentage d'anthraquinone (AQ) introduit est élevé et permet ainsi d'obtenir le maximum d'amélioration que peut apporter ce catalyseur.

3.2.2. Résultats

La cinétique de délignification est suivie en faisant varier le temps de palier (20, 30, 60, 90 et 120 min) après une montée en température identique pour chaque obus. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau III.

Il ressort de cette étude que la délignification illustrée par le graphique $\ln(K.R) = f(t)$ (Fig. 2) peut être assimilée, après

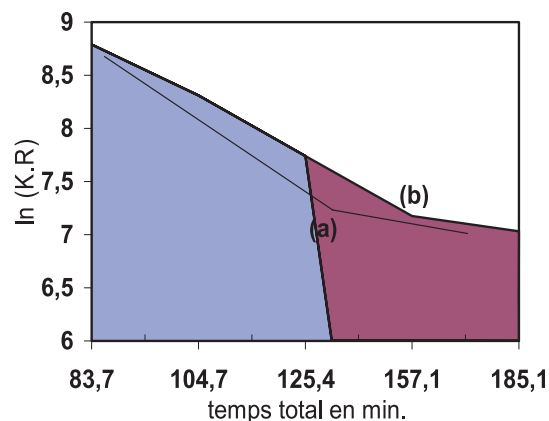


Figure 2. Graphique de détermination du point de transition entre la délignification principale (a) et la délignification finale (b). Ln : logarithme népérien, K : indice Kappa, R : rendement brut.

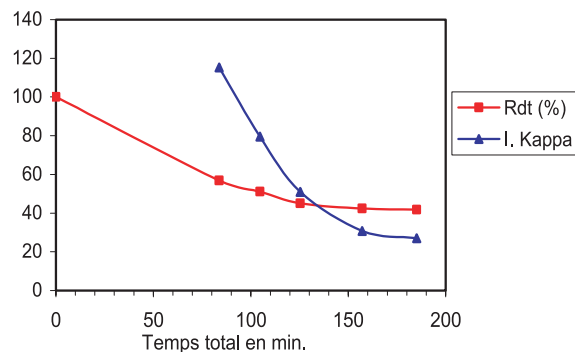


Figure 3. Évolution du rendement brut et de l'indice Kappa en fonction du temps total de cuisson.

la phase de montée en température, à la succession de 2 lois d'ordre 1 : principale et finale [6, 9]. Le point de transition situé entre la délignification principale (Fig. 2(a)) et la délignification finale (Fig. 2(b)) correspond à l'optimum où les pâtes possèdent les meilleures caractéristiques mécaniques possibles et peuvent se blanchir facilement. Pour le bois de thuya « jeune » ce point de transition se situe à 145 min pour une température de palier 165 °C, ce qui correspond à un facteur H [13] égal à 1018.

Les évolutions du rendement brut et de l'indice Kappa en fonction du temps de cuisson sont représentées sur la figure 3.

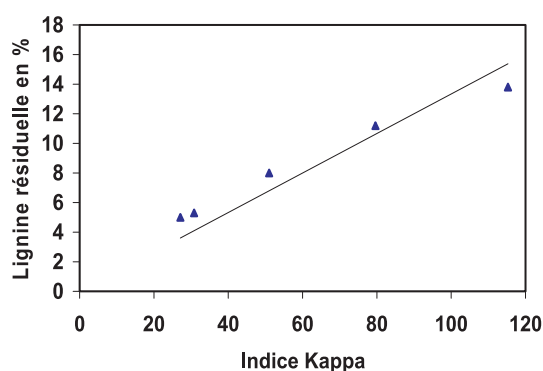
La relation liant le taux lignine résiduelle à l'indice Kappa a une tendance linéaire comme le montre la figure 4 et conduit à la relation : % lignine = 0.13 × indice Kappa.

3.3. Caractéristiques physico-chimiques et physico-mécaniques de la pâte écrue

L'étude de la pâte écrue correspondant au point de transition entre la délignification principale et la délignification finale (durée totale de cuisson de 145 min), a permis d'obtenir les résultats suivants (Tab. IV).

Tableau III. Résultats de la délignification de bois thuya de Berbérie.

Cuisson	Temps total de cuisson (min)	Temps de palier (min)	Rendement brut (%)	Indice Kappa	Tx. lignine résiduelle (%)
1	83,7	20	56,87	115,3	13,8
2	104,7	30	51,11	79,6	11,2
3	125,4	60	45,05	51,0	8,0
4	157,1	90	42,48	30,8	5,3
5	185,1	120	41,77	27,1	5,0

**Figure 4.** Évolution du % du taux de lignine résiduelle en fonction de l'indice Kappa.**Tableau IV.** Caractéristiques physico-chimiques de la pâte écrue.

Rendement brut (%)	43,3
Rendement net (%)	41,9
Indice Kappa	33,6
Degré de polymérisation viscosimétrique DP_v	1412
Indice de furfural	2,7
Taux de pentosanes (%)	4,61
Lignine résiduelle (%)	5,6
Longueur des fibres (mm) :	
– Pondérée	1,369
– Arithmétique	1,006

(%) Pourcentage par rapport au bois sec.

3.3.1. Caractéristiques physico-chimiques de la pâte écrue

Il ressort du tableau IV que le bois de thuya peut être délignifié par le procédé *soude-AQ* mais que la pâte obtenue ne sera pas très facile à blanchir, car son indice Kappa est assez élevé.

Le degré de polymérisation viscosimétrique « DP_v », est bien supérieur à la valeur critique de 1100 [3], ce qui est favorable au procédé.

Le rendement est une valeur normale compte tenu de la teneur élevée en lignine de ce bois (35,7 %).

L'indice de furfural est faible et renseigne sur la faible teneur de la pâte en hémicelluloses : le taux de pentosanes calculé correspond à 4,6 %.

Tableau V. Caractéristiques mécaniques de la pâte écrue.

°SR	45
Indice de déchirement (ID%)	829
Indice d'éclatement (IE)	3,43
Grammage (g/m^2)	61,1
Épaisseur (μm)	81,6
Main (cm^3/g)	1,34
Longueur de rupture (m)	6600
Allongement à la rupture (%)	2,83
Longueur de rupture à mâchoires jointives (LR_0 sec.) (m)	13466
Double-plis (sous 600 g)	709

Par ailleurs, le dosage de la soude restante dans la liqueur noire a indiqué que la soude consommée s'élève à 13,4 % (par rapport au bois sec) ; ce qui permet de préciser la quantité initiale de soude nécessaire pour la cuisson du bois de thuya de 18 à 21 % pour un rapport L/B de 3 à 3,5.

3.3.2. Caractéristiques mécaniques de la pâte écrue

Les résultats des essais mécaniques réalisés sur les feuilles de papier obtenu avec la pâte raffinée à 45 °SR sont rassemblés dans le tableau V.

Par rapport aux données publiées en la matière [3, 11] ces caractéristiques physiques des papiers correspondent plus à celles obtenues à partir d'une pâte issue d'un bois feuillu plutôt que d'un résineux, cela peut être attribué au fait que les fibres du thuya de Berbérie sont relativement courtes par comparaison aux fibres des résineux communs (Tab. IV).

4. CONCLUSION

Le thuya de Berbérie (*Tetraclinis articulata* Vahl), espèce endémique de l'Afrique du Nord, présente une composition chimique qui est proche de celle des résineux qui se développent en région tempérée, mais avec une teneur en lignine plus élevée.

La réactivité à la délignification par le procédé *soude-anthraquinone* fait observer une nette différence entre son bois jeune et son bois âgé, par le fait que ce dernier comporte un duramen très riche en lignine. Ceci justifie l'opportunité d'utiliser un matériel végétal jeune, riche en cellulose avec un taux de lignine faible, pour la mise en pâte du bois de thuya.

L'étude de la cinétique de délignification à la température de palier de 165 °C a permis de situer le point de transition entre la délignification principale et la délignification finale pour des copeaux d'épaisseur comprise entre 4 et 5 mm ; ce point correspond à une durée totale de cuisson de 145 min, c'est-à-dire un facteur H égal à 1018.

Le taux initial de soude à utiliser est égal à 21 % pour un rapport L/B de 3,5.

Les caractéristiques de la pâte obtenue dans les conditions précitées donnent un rendement brut de 43,3 % avec un indice Kappa de 33,6. Cette pâte présente un degré de polymérisation viscosimétrique (DPv) égal à 1410 et un indice furfural égal à 2,7.

Les caractéristiques physiques de la pâte raffinée à 45 °SR correspondent à celles que l'on peut attendre de la part d'un bois feuillu plutôt que d'un résineux.

Remerciements : Nos remerciements vont à F. Huber, R. Keller, P. Perre du laboratoire Lermab et du Laboratoire des Produits Forestiers à l'Engref, 14 Rue Girardet Nancy, pour leur contribution à l'image en microscopie électronique à balayage environnementale.

RÉFÉRENCES

- [1] Afnor, Papiers, cartons et pâtes, méthodes d'essais, AFNOR, 2^e éd., 1979.
- [2] Benabid A., Étude sylvo-pastorale de la tétraclinaie de l'Amsittène (Maroc), *Ecologia Mediterranea* 3 (1977) 125.
- [3] Boudy P., Économie Forestière Nord Africaine, Monographie et traitement des essences forestières, Fascicule I, Edit. Larose, 1950.
- [4] Chene M., Chimie appliquée à l'analyse des matériaux et produits celluloseux, J.B. Baillière et fils, Éd., 1963.
- [5] Dakak J.E., La qualité du bois de thuya de Maghreb (*Tetraclinis articulata*) et ses conditions de développement sur ses principaux sites phytoécologiques de son bloc méridional au Maroc, Thèse Engref, Nancy, France, 14 Janvier 2002.
- [6] Gierer J., Chemistry of délignification. Part 1. General concept and reactions during pulping, *Wood Sci. Technol.* 19 (1985) 28.
- [7] Huynh-Long V., Analyse anatomique du bois de conifères (*Pinus Khasya* Royale), *Bull. Soc. Roy. Bot.* 105 (1972) 23.
- [8] Janin G., Microtests papetiers : microcuisson, microclassement, microcraffinage. Mesure automatique de la longueur des fibres, Thèse de Doctorat d'État es Sciences de l'Université Scientifique et Médicale, École EFP, Institut National Polytechnique de Grenoble, 5 Mai 1983.
- [9] Labidi A., Étude de la délignification en continu du bois de peuplier en milieu basique : cinétique et chimie des procédés. Caractérisation des lignines extraites, Thèse Doctorat INPG, Grenoble, 1989.
- [10] Robert A., Contribution à l'étude du rôle de l'antraquinone dans les cuissons alcalines, ISWPC, Paris, 27-30 Avril, 1987, Vol. 1, p. 415.
- [11] Silvy J., Romatier G., Chiodi R., Méthodes pratiques de contrôle du raffinage, ATIP, (1968) 22.
- [12] Vallette D., Dechoudens C., Le bois, la pâte et les papiers, Centre technique du papier, 2^e éd., 1989.
- [13] Vroom K.E., The "H" factor : A means of expressing cooking times and temperatures as a single variable, *Pulp Paper Mag. Can.* 88 (1957) 228.