

MICROSTRUCTURES ET COUPLAGES HYGRO-MÉCANIQUES DANS LES MATÉRIAUX À BASE DE FIBRES LIGNO-CELLULOSIQUES (PAPIERS, NON-TISSÉS ET FILMS)

P.J.J. Dumont¹, L. Orgéas², J. Viguié^{1,2}, S. Rolland du Roscoat², C. Marulier^{1,2}, P. Latil^{1,2}, F. Martoia^{1,2}

¹ Laboratoire LGP2, CNRS / Université de Grenoble Alpes, 461 rue de la Papeterie, CS 10065 38402 Saint-Martin-d'Hères, France.

Téléphone : 04 76 82 69 21, Télécopie : 04 76 82 69 33

Adresse électronique : pierre.dumont@grenoble-inp.fr

² Laboratoire 3SR, CNRS / Université de Grenoble Alpes, Domaine universitaire, BP 53, 38041 Grenoble cedex 9, France.

Mots clés : réseaux fibreux, imagerie 3D, labellisation fibres et contacts, changement d'échelles, propriétés mécaniques

1 INTRODUCTION

Une large part des matériaux biosourcés produits actuellement sont des milieux constitués d'un réseau de fibres enchevêtrées plus ou moins bien ordonnées (figure 1). C'est la cas des papiers où les fibres sont extraites du bois ou de plantes par des procédés chimiques ou thermomécaniques, puis traitées chimiquement (blanchiment) ou mécaniquement (raffinage). C'est aussi le cas des films de nanofibrilles et microfibrilles de cellulose elles-mêmes extraites des fibres ligno-cellulosiques par des procédés chimiques et mécaniques, ainsi que celui des non-tissés de fibres végétales. Ces milieux fibreux peuvent être imprégnés en surface ou dans la masse par des matrices polymères formant ainsi des matériaux composites.

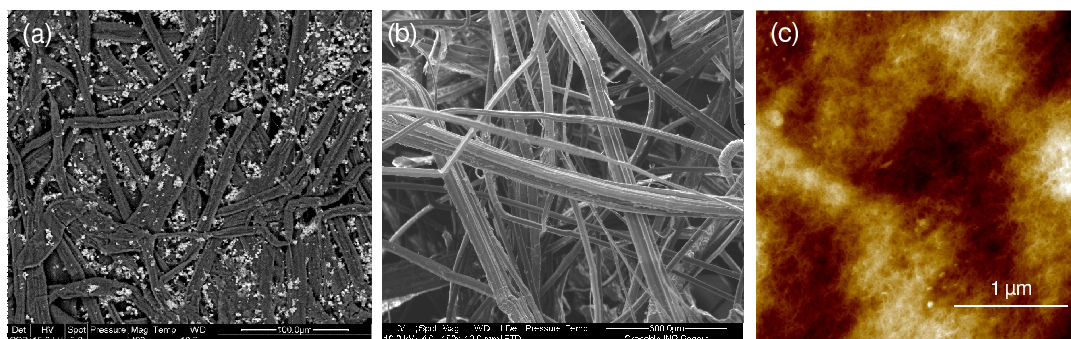


FIG. 1 – Exemple de milieux fibreux biosourcés : (a) micrographie MEB de la surface d'un papier impression-écriture contenant des charges minérales granulaires, (b) d'un non-tissé de fibres de lin et (c) micrographie AFM de la surface d'un film de nanofibrilles de cellulose.

Dans ces milieux, les fibres sont liées entre elles par des liaisons frottantes ou des liaisons cohésives dont la nature chimique est de type hydrogène et van der Waals.

Il est difficile de caractériser expérimentalement leur architecture ; il l'est encore plus de la modéliser. Les méthodes actuelles d'observations microscopiques ne permettent d'obtenir qu'un nombre réduit de propriétés morphologiques et physiques (Eichhorn *et al.*, 2001) pour un nombre réduit d'objets testés, ce qui limite la signification statistique des propriétés étudiées. Les techniques d'observations tridimensionnelles (par exemple microtomographie à rayons X) ne sont pas complètement opérantes en raison même de la complexité géométrique des fibres et l'étendue des échelles d'observations nécessaires (depuis l'échelle nanométrique jusqu'à l'échelle millimétrique).

L'estimation des propriétés effectives (propriétés mécaniques, hygroexpansion, perméabilité, conductivité thermique, etc.) des milieux fibreux est difficile en raison de la complexité de l'agencement des fibres qui les constituent (Picu, 2011). Leur déformation est souvent marquée par des non-linéarités géométriques et des phénomènes d'instabilité (flambement, localisation, fissuration). Globalement, leur réponse mécanique dépend de la conformation des fibres et des liaisons entre fibres, de leurs réponses mécaniques respectives voire de la réponse mécanique des matrices polymériques qui possi-

blement les imprègnent. Leur comportement mécanique est le plus souvent marquée par une anisotropie qui évolue avec la déformation.

Les comportements mécaniques des fibres et des liaisons sont également très complexes. Celui des liaisons entre fibres est particulièrement mal connu. Quant aux fibres, elles forment des structures multi-échelles et multi-matériaux dont la géométrie est variable (figure 2). Leur déformation se traduit généralement par des fortes non-linéarités géométriques (Åslund et Isaksson, 2011). Leur comportement mécanique est anisotrope, non-linéaire (visco-élastoplastique) et dépend fortement des conditions environnementales de température et surtout d'humidité (couplages thermo-hygromécaniques) : figure 2(a). Néanmoins, leurs propriétés spécifiques sont en général très bonnes alors que celles des milieux fibreux qu'elles constituent sont comparativement faibles.

La modélisation de leurs propriétés effectives (propriétés mécaniques, hygroexpansion, perméabilité, conductivité thermique, etc.) nécessite le développement et le perfectionnement d'approches théoriques de changement d'échelles afin de construire des modèles mésoscopiques pertinents (Picu, 2011). Le champ d'application de ces modèles est plus vaste que celui de modèles construits sur la base d'approches purement mésoscopiques et phénoménologiques et est souvent restreint à quelques systèmes particuliers. Le grand intérêt des modèles de changement d'échelles est de mettre clairement en évidence les rôles couplés de la microstructure et de la micro-mécanique des fibres sur le comportement mésoscopique des milieux fibreux. Dans ces approches multi-échelles, le caractère phénoménologique des mécanismes de déformation se situe à l'échelle des fibres et des liaisons. Il devient donc nécessaire de décrire correctement les microstructures ainsi que les mécanismes activés à l'échelle des fibres et de leurs liaisons. Cette étude illustre l'intérêt de l'emploi d'outils d'imagerie, en particulier tridimension-

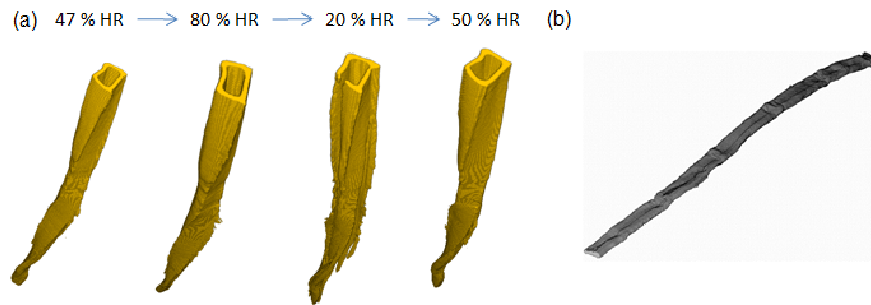


FIG. 2 – Micrographies tridimensionnelles obtenues sur la ligne ID19 de l'ESRF (taille de voxels de $0.28 \mu\text{m}/\text{voxel}$) illustrant (a) le phénomène de torsion marquant les fibres de bois au cours d'un essai *in situ* d'hygroexpansion naturelle (lire Toungara et al. dans ce recueil) et (b) la géométrie d'une fibre papetière de résineux pour laquelle on peut noter l'aplatissement des sections de cette fibre lié aux traitements d'extraction. Longueur des portions de fibres scannées de 0.6 mm .

nels, pour la caractérisation des microstructures fibreuses et la mesure de descripteurs microstructuraux et pour la modélisation, ici par homogénéisation discrète, du comportement hygromécanique de matériaux fibreux ligno-cellulosiques formant des réseaux enchevêtrés avec liaisons cohésives entre fibres. La démarche est illustrée pour une série de papiers modèles. Les objectifs sont (i) de décrire finement les réseaux fibreux à l'aide d'images, (ii) de déterminer les effets des conditions d'élaboration et des variations de conditions d'humidité sur les propriétés microstructurales et leur évolution et (iii) d'intégrer ces données réalistes dans un modèle de prévisions du comportement élastique.

2 PAPIERS MODÈLES

Les papiers modèles (figure 3(a)) ont été fabriqués à partir de fibres papetières de résineux non raffinées et classées en faisant varier les conditions des opérations unitaires de base de la fabrication des papiers, c'est-à-dire les opérations de formation, de pressage et de séchage (Sampson, 2009) dans le but de contrôler au mieux leur microstructure. L'opération de formation a permis de moduler l'orientation des fibres dans le plan des feuilles produites, tandis que le pressage a été utilisé pour adapter leur porosité alors que des conditions de séchage libres ou contraintes ont été adoptées pour faire varier les états de contraintes internes. Leurs propriétés mécaniques et hygroexpansives à l'échelle «macroscopique» sont typiques de nombreuses sortes de papiers : le pressage a notamment une forte influence sur la porosité des papiers modèles (figure 4(a)), l'augmentation de leur masse volumique a un effet prépondérant sur l'augmentation de leur module de Young et de leur contrainte à la rupture et leurs propriétés mécaniques et hygroexpansives sont fortement anisotropes, en lien avec l'orientation des fibres dans le plan des feuilles.

3 CARACTÉRISATION TRIDIMENSIONNELLE DES PROPRIÉTÉS DES RÉSEAUX FIBREUX

3.1 Apport de la microtomographie à rayons X à la caractérisation microstructurale discrète des milieux fibreux

La microtomographie à rayons X est une technique d'imagerie tridimensionnelle qui a permis de réaliser des progrès substantiels sur la caractérisation microstructurale des matériaux fibreux. Combinée à des techniques d'analyse d'images appropriées, la microtomographie permet la mesure de descripteurs d'ensemble des microstructures fibreuses (fraction volumique de fibres ou de pores, surface spécifique du renfort fibreux, longueur de covariance) (Rolland du Roscoat *et al.*, 2007; Le *et al.*, 2008; Viguié *et al.*, 2011; Guiraud *et al.*, 2012). Pour les papiers où les enchevêtrements fibreux et la géométrie des fibres sont extrêmement complexes, l'obtention de descripteurs plus fins et «discrets» des fibres et des liaisons (ligne moyenne des fibres, l'inclinaison et les dimensions des sections droites des fibres, le nombre de liaisons, le degré de liaison des fibres et la surface des liaisons des liaisons, etc. (figures 3-5) est bien plus difficile. Les premiers travaux entamés dans ce sens (Marulier *et al.*, 2012) ont reposé sur

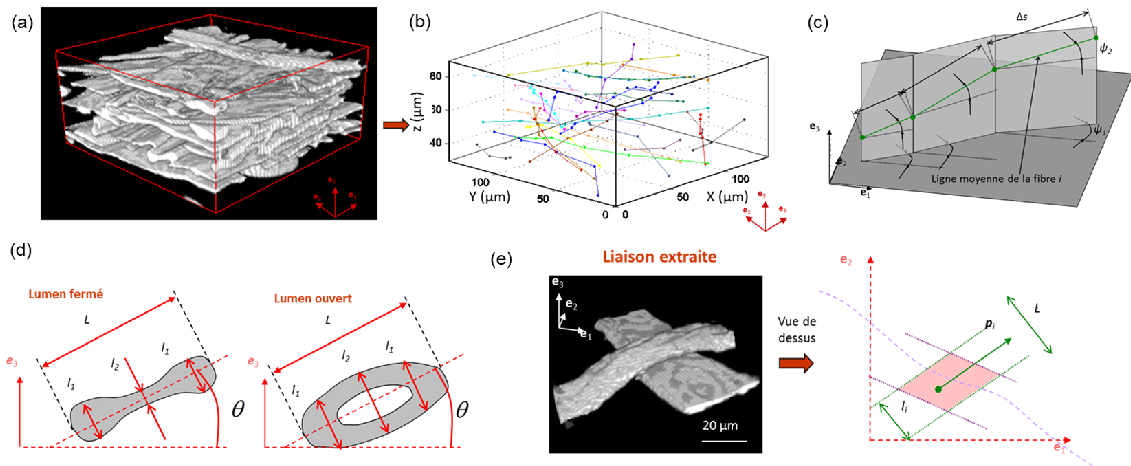


FIG. 3 – (a) Micrographie tridimensionnelle (ESRF, ligne ID19) d'un papier modèle : volume de $140 \mu\text{m} \times 140 \mu\text{m} \times 90 \mu\text{m}$. (b) Lignes moyennes des fibres extraites de l'image montrée en (a), les points correspondent à la positions des centres des contacts entre fibres. (c) Angles Ψ_1 et Ψ_2 caractérisant l'orientation des segments des lignes moyennes des fibres. (d) paramètres caractérisant les dimensions et l'orientation des sections droites des fibres. (e) idem pour des sections à lumen ouvert. (f) Vue tridimensionnelle d'une liaison entre deux fibres. (g) Représentation schématisée en vue de dessus d'une liaison et des paramètres dimensionnels mesurés.

des méthodes de mesure essentiellement manuelles de différents descripteurs des propriétés morphologiques des fibres et des liaisons tels que la ligne moyenne des fibres, l'inclinaison et les dimensions des sections droites des fibres, le nombre de liaisons, le degré de liaison des fibres et la surface des liaisons des liaisons (figures 3-5). Cette analyse délivre une information extrêmement riche sur la microstructure des papiers et permet de suivre l'évolution de ces descripteurs en fonction, par exemple, des paramètres de fabrication (figures 4-5) ou des conditions d'humidité relative (figure 6). Les résultats obtenus sur les propriétés morphologiques des fibres et des liaisons sont d'ailleurs en accord avec ceux de la littérature. Néanmoins, l'utilisation des images tridimensionnelles remplace avantageusement l'utilisation jusqu'à présent nécessaire d'un grand nombre de dispositifs de microscopie ainsi que d'échantillons nécessaires pour récolter un nombre aussi important de données microstructurales pour ce type de milieux sur une même série d'échantillons. Pour les papiers modèles, nous avons pu ainsi établir les constats suivants :

- Les mesures effectuées ont montré le caractère statistique de ces différents descripteurs. Leurs fonctions de distribution se stabilisent rapidement avec l'augmentation du nombre d'objets traités (fibres, liaisons).
- Selon les conditions d'élaboration des papiers, les fibres sont plus ou moins vrillées au sein des réseaux fibreux (figure 4(b)). Leur ligne moyenne et le grand axe de leur section droite sont quasiment parallèles au plan moyen (e_1, e_2) des feuilles de papier (figure 4(c)). L'orientation des lignes moyennes dans ce plan peut être aléatoire ou bien suivre une orientation préférentielle induite par le procédé d'élaboration. Les sections droites des fibres ont une forme aplatie (figures 4(d-f)).

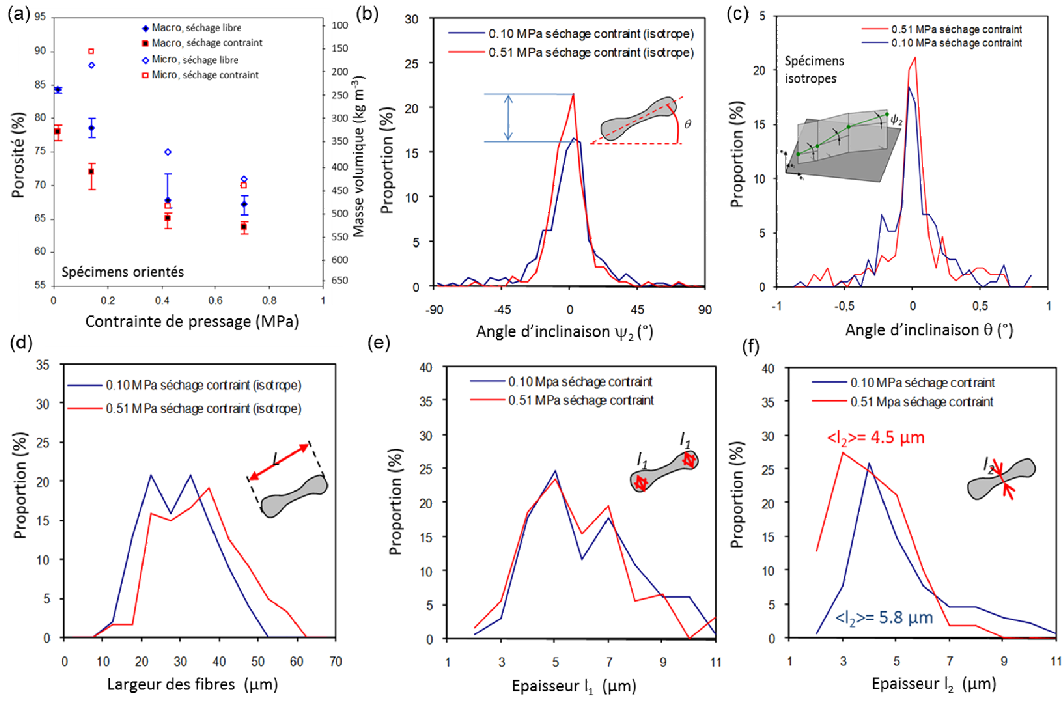


FIG. 4 – (a) Évolution de la porosité des papiers modèles en fonction de la contrainte de pressage et du type de séchage : «Micro» indique une mesure réalisée au moyen des images de microtomographie et «Macro» une estimation de la porosité à partir d’une mesure de grammage et d’épaisseur des papiers. Influence des conditions de pressage sur les (b) distribution des angles d’inclinaison des segments des lignes moyennes pour deux papiers ayant subi un pressage différent, (c) distribution des angles d’inclinaison des sections droites des fibres, (d) distribution des largeurs des fibres et des épaisseurs (e) des extrémités des sections et (f) du centre des sections des fibres de papiers modèles (cas du séchage contraint).

- la fraction volumique de fibres ϕ des papiers modèles varie entre 0.10 et 0.45, les distances moyennes entre le centre des liaisons le long d’une fibre est inférieure à $50 \mu\text{m}$, c’est-à-dire une longueur de l’ordre de la largeur d’une fibre (cf. figure 5(a)) : ceci montre que les réseaux fibreux sont très fortement connectés. Il y a plus de 20 contacts fibre-fibre par fibre, figure 5(b-d). Les segments de fibres entre contacts ne peuvent ainsi pas être considérés comme élancés, même si les fibres sont elles-mêmes des objets élancés, alors que c’est pourtant une hypothèse de base de nombre de modèles de la littérature (Kulachenko *et al.*, 2012).
- L’examen du nombre de contacts par fibres sur une longueur cumulée de 1.5 à 2 mm, c’est-à-dire proche de la longueur moyenne des fibres, est suffisant pour obtenir une estimation représentative du nombre de contacts par unité de longueur de fibre. Ceci permet de prédire la taille minimale de volumes élémentaires représentatifs (VER) de réseaux de fibres enchevêtrées à prendre en considération pour déterminer le nombre de contacts fibre-fibre par fibre mais également de tester la validité de modèles de prévision de nombres de contacts dans les milieux fibreux. Le nombre de contacts fibre-fibre par fibre $\bar{z}$ peut être correctement estimé par une approche statistique de modèle de tube (Doi et Edwards, 1978; Ranganathan et Advani, 1991; Toll, 1993; Le Corre *et al.*, 2005; Guiraud *et al.*, 2012; Orgéas *et al.*, 2012) écrit en considérant que les fibres sont droites et aplaties et que leurs sections sont constantes et elliptiques avec un grand d_{max} et un petit axe d_{min} (Guiraud *et al.*, 2012) :

$$\bar{z} = 4\alpha\phi \left(\frac{2}{\pi} \frac{l}{d_{max}} \varphi_1 + \varphi_2 + 1 \right), \quad (1)$$

où φ_i sont des fonctions caractéristiques de l’orientation des fibres (par exemple, $\varphi_1 = \varphi_2 = 2/\pi$ pour des orientations isotropes (Toll, 1993)). Ces fonctions peuvent être estimées connaissant l’orientation de N fibres i de vecteur directeur $\mathbf{p}_i$ à l’intérieur d’un VER, ici mesurée par l’imagerie tridimensionnelle :

$$\varphi_1 = \frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \|\mathbf{p}_i \times \mathbf{p}_j\| \text{ et } \varphi_2 = \frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N |\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j|. \quad (2)$$

Cette expression n'est valide que dans le cas où les fibres ont une orientation plane (Guiraud *et al.*, 2012). Nous avons pu également observer que les fibres des papiers modèles ne sont complètement plates et peuvent être vrillées. Le paramètre α rend compte de cette particularité géométrique de manière simple : le petit axe d_{min} de la section droite elliptique du volume du tube de contrôle, qui représente l'épaisseur des fibres de papier quand celles-ci ne sont pas vrillées, a été remplacé par αd_{min} où $\alpha \geq 1$. Une valeur de ce paramètre proche de 2 permet de représenter correctement les résultats expérimentaux.

- Les surfaces S_c des liaisons entre fibres se révèlent être petites. Le degré de liaison $\bar{b}$ qui est défini comme le rapport de la largeur d_c du contact sur la largeur moyenne des fibres d_{max} est une fonction de la fraction volumique de fibres ϕ avec une valeur moyenne égale à 0.35. En faisant l'hypothèse que l'aire des liaisons est $S_c \propto d_c^2$, on peut alors estimer l'ordre de grandeur des aires de liaisons par $S_c \propto \bar{b}^2 d_{max}^2 \approx 0.125 d_{max}^2$.

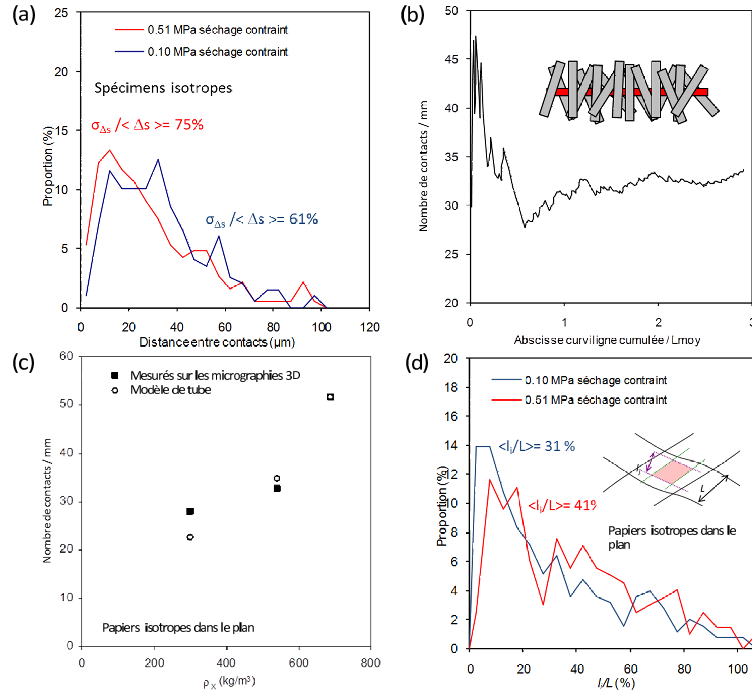


FIG. 5 – (a) Distributions des distances entre contacts pour deux conditions de pressage. (b) Évolution du nombre de contacts fibre-fibre par unité de longueur de fibre en fonction de la longueur cumulée de segments de fibres examinés. (c) Évolution du nombre de contacts fibre-fibre par fibre en fonction de la masse volumique des papiers modèles. (d) Distribution du degré de liaison.

3.2 Apport des liaisons entre fibres aux mécanismes d'hygroexpansion

Combinée à des dispositifs d'essais, mécaniques par exemple, ou permettant un contrôle des conditions environnementales autour des échantillons, l'imagerie par microtomographie à rayons X permet un suivi des mécanismes de déformation des milieux fibreux (Latil *et al.*, 2011). Cette approche a été mise en œuvre dans Marulier (2013) pour suivre les déformations d'hygroexpansion de quelques échantillons de papiers modèles soumis à des variations d'humidité relative ainsi que celles de quelques fibres isolées à l'intérieur de leur structure fibreuse (figure 6). L'analyse des données obtenues a permis de mesurer les coefficients d'hygroexpansion hors plan β_t des papiers et d'estimer les coefficients d'hygroexpansion longitudinal β_f^L et transversal β_f^r des fibres. Les données obtenues peuvent être utilisées dans un modèle d'hygroexpansion des milieux fibreux naturels, par exemple celui développé par Uesaka (1994). En considérant que les fibres ont un comportement orthotrope de révolution, les coefficients d'hygroexpansion β_{MD} , β_{CD} et β_t macroscopiques des papiers selon leurs sens marche, travers et leur épaisseur s'écrivent en fonction des coefficients d'hygroexpansion des fibres mesurés *in situ* comme suit :

$$\beta_{MD} = \beta_f^L + b_1(\beta_f^r - \beta_f^L), \beta_{CD} = \beta_f^L + b_2(\beta_f^r - \beta_f^L) \text{ et } \beta_t = \beta_f^r - b_3(\beta_f^r - \beta_f^L). \quad (3)$$

Les coefficients b_1 , b_2 et b_3 caractérisent le degré de transfert des contraintes dans le réseau fibreux selon les sens marche et travers et l'épaisseur des papiers à la direction transversale des fibres. En d'autres

termes, ces coefficients caractérisent l'efficacité des liaisons à transmettre l'hygroexpansion des fibres à l'ensemble du réseau fibreux. Les valeurs calculées pour ces coefficients en utilisant les mesures expérimentales obtenues précédemment sont très faibles. Pour des papiers où les fibres présentent une orientation préférentielle dans le plan, en tenant compte des valeurs expérimentales obtenues pour les coefficients d'hygroexpansion, les valeurs de ces coefficients sont les suivantes $b_1 \approx 0$, $b_2 \approx 0.008$, c'est-à-dire des valeurs proches de celles obtenues par Uesaka (1994). Ceci montre que l'hygroexpansion dans le plan des papiers est dominée par l'hygroexpansion longitudinale des fibres, ce qui va à l'encontre de l'interprétation classique du phénomène d'hygroexpansion des papiers, dont l'origine est traditionnellement attribuée au phénomène d'hygroexpansion transversale des fibres. Le coefficient $b_3 \approx -0.08$ est négatif parce que le coefficient d'hygroexpansion β_t est légèrement plus important que le coefficient d'hygroexpansion transversale des fibres β_f^r . La valeur négative de ce coefficient montre que l'hygroexpansion selon l'épaisseur des papiers n'est pas uniquement reliée à l'hygroexpansion transversale des fibres β_f^r , mais pourrait également être liée à un phénomène de déformation hors plan des fibres au cours du l'humidification du papier.

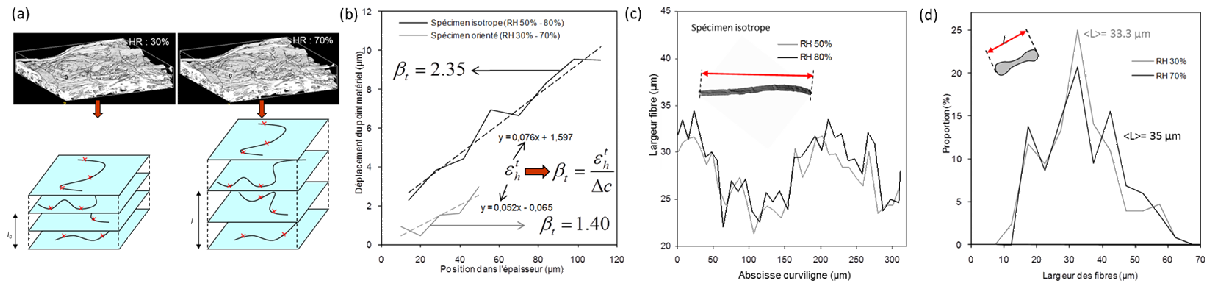


FIG. 6 – (a) Images tridimensionnelles d'un papier modèle soumis à des variations d'humidité relative : illustration de la méthode de suivi de points matériels du réseau utilisée pour estimer les déplacements hors plan dus à l'hygroexpansion de points matériels du réseau. (b) Déplacements de points matériels en fonction de leur position dans l'épaisseur des papiers modèles testés : la pente de la fonction d'interpolation permet d'identifier les coefficients d'hygroexpansion β_t selon leur épaisseur. (c) Illustration des mesures des dimensions des fibres isolées dans les images des papiers modèles. (d) Évolution de la largeur d'une fibre le long de sa ligne moyenne en fonction de l'humidité relative. (e) Distributions des largeurs des fibres mesurées dans les images 3D d'un papier modèle soumis à une variation d'humidité relative.

3.3 Vers l'automatisation des techniques d'individualisation des fibres et de détection des contacts

Utiliser des images tridimensionnelles pour analyser les propriétés des milieux fibreux présente un intérêt indéniable quant à la richesse de l'information qui peut en être extraite. Cependant, les techniques d'analyse restent à l'heure actuelle majoritairement manuelles dès lors qu'il s'agit d'obtenir des informations sur les fibres et les liaisons individuelles dans des milieux fibreux aussi complexes que des papiers. Dès lors, il apparaît nécessaire d'automatiser les méthodes d'analyse d'images dédiées à l'extraction de ce type d'informations. Récemment, une méthode automatique d'identification des fibres et des contacts dans des réseaux de fibres enchevêtrées a été mise au point par Viguié *et al.* (2013). Celle-ci est basée sur l'exploitation de la carte d'orientation locale des fibres construite à partir de cartes de distances directionnelles (Altendorf et Jeulin, 2009). La carte d'orientation délivre en chaque voxel de la phase «fibres» des images un vecteur d'orientation local. Le principe de la méthode réside ensuite :

1. Dans l'élimination de régions de l'image présentant de forts gradients d'orientation. (Cette opération est réalisée par une opération de seuillage sur une carte construite à partir de la carte d'orientation locale qui représente la déviation angulaire moyenne entre chaque voxel et ses voisins. Cette opération aboutit à la séparation des fibres et finalement à leur identification ou labellisation.)
2. Dans la reconstruction des parties des fibres qui ont été éliminées au cours de la première opération. (Cette opération nécessite la réalisation d'opérations de dilatation spéciales sur les zones labellisées en utilisant pour ceci des éléments structurants orientés. Elle permet d'aboutir également à l'identification des zones de contact entre fibres.)

La procédure mise au point délivre des images tridimensionnelles dans lesquelles les fibres sont labellisées ainsi que que les contacts entre fibres (figure 7). L'algorithme a été implémenté sous le logiciel Matlab et est décrit en détail dans Viguié *et al.* (2013). Cette approche est actuellement mise en œuvre pour suivre les déformations dues à l'hygroexpansion de fibres de lin de mats non-tissés utilisés comme renforts de matériaux composites.

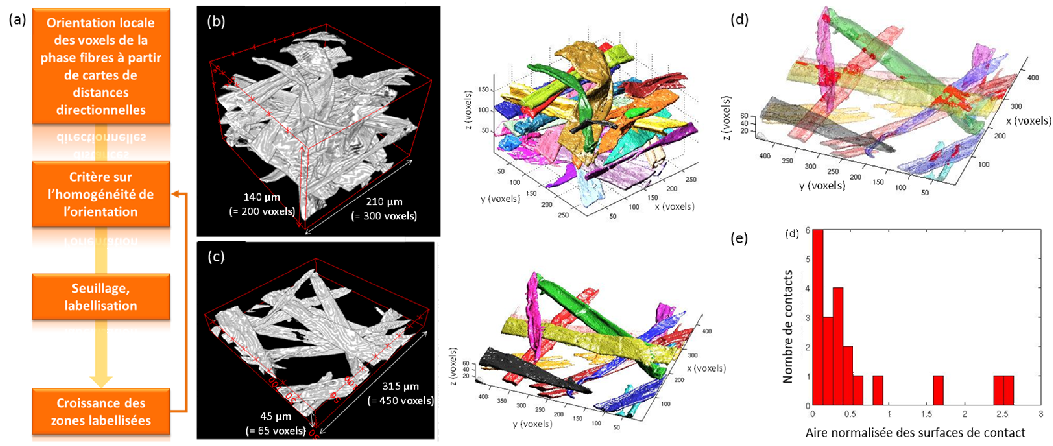


FIG. 7 – Images tridimensionnelles obtenues par microtomographie à rayons X de papiers modèles (a) *pressage faible* ($300 \times 300 \times 200$ voxels, $1 \text{ voxel} = 0.7 \mu\text{m} \times 0.7 \mu\text{m} \times 0.7 \mu\text{m}$) et (b) *pressage standard* ($450 \times 450 \times 65$ voxels, $1 \text{ voxel} = 0.7 \mu\text{m} \times 0.7 \mu\text{m} \times 0.7 \mu\text{m}$), et ces mêmes images avec les fibres labellisées une fois la procédure d'identification mise en œuvre. (d) Zones de contact entre fibres représentées en rouge dans une image labellisée. (e) Distribution correspondante des surfaces des contacts fibre-fibre.

4 MODÉLISATION DU COMPORTEMENT ÉLASTIQUE DES RÉSEAUX FIBREUX PAR HOMOGENÉISATION DISCRÈTE

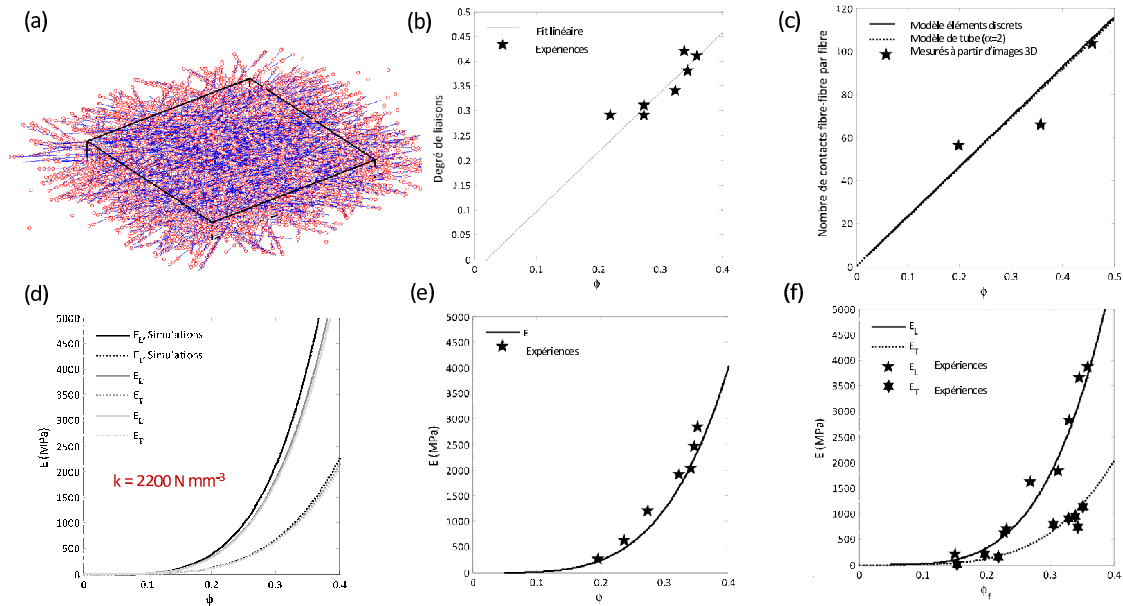


FIG. 8 – (a) Exemple d'un réseau fibreux généré numériquement ayant une orientation fibreuse isotrope dans le plan et une fraction de fibres $\phi = 0.15$. Les lignes représentent les lignes moyennes des fibres ($l = 2000 \mu\text{m}$) et les cercles les centres des liaisons. (b) Évolution du degré de liaison moyen $\bar{b}$ avec la fraction de fibres ϕ des papiers modèles (cas de papiers à structure isotrope dans le plan) : la ligne représente le fit utilisé dans les modèles numériques et analytiques. (c) Comparaison entre l'évolution du nombre de contacts moyens par fibre $\bar{z}$ mesuré et le nombre estimé par le modèle de tube 3.1 et celui obtenu à partir des réseaux générés numériquement (cas de réseaux fibreux à orientation isotrope dans le plan). (e) Comparaison de l'évolution des modules d'élasticité avec la fraction de fibres ϕ mesurés et prévus par les modèles numérique et analytique dans le cas de papiers à structure isotrope dans le plan. (f) Idem (e) dans le cas de papiers à structure orientée dans le plan.

En s'appuyant sur les observations microstructurales précédentes, nous proposons un modèle basé sur une approche de changement d'échelles par homogénéisation des structures périodiques discrètes (Le Corre *et al.*, 2004) pour prédire le comportement élastique des papiers (Marulier, 2013). Dans

ce modèle discret, les feuilles de papier sont vues comme des structures fines où chacune des fibres ligno-cellulosiques est une poutre droite, rigide et élancée avec des sections droites planes, elliptiques et constantes dont les axes principaux sont parallèles au plan moyen des feuilles. Les fibres ont une orientation isotrope ou orientée dans le plan des feuilles. Elles présentent une forte connectivité caractérisée par des liaisons fibre-fibre élastiques qui contribuent à la déformation des réseaux, avec aussi les mouvements de corps rigides des fibres. Les surfaces de contact entre fibres sont petites et leur orientation est donnée par un vecteur unitaire normal au plan moyen des feuilles. Dans ce cadre, il est possible de montrer que l'expression du tenseur des contraintes du milieu continu équivalent s'écrit selon :

$$\tilde{\sigma} = \frac{1}{V} \sum_{b \in \mathcal{B}} \tilde{\xi}_b \otimes \mathbf{f}_b^{(0)} \text{ avec } \tilde{\xi}_b = \mathbf{G}_i \mathbf{G}_j = s_i^b \tilde{\mathbf{p}}_i - s_j^b \tilde{\mathbf{p}}_j \text{ et } \mathbf{f}_b^{(0)} = k \frac{\bar{b}^2 d_{max}^2}{|\sin \theta_b|} \Delta \tilde{\mathbf{u}}_b^{(1)}, \quad (4)$$

où V est le volume du volume élémentaire représentatif (VER) mécanique et $\mathbf{G}_i$ et $\mathbf{G}_j$ sont les centres de gravité de deux fibres i et j de vecteur d'orientation respectif $\tilde{\mathbf{p}}_i$ et $\tilde{\mathbf{p}}_j$ connectées par la liaison b d'abscisse curviligne s_i^b sur la fibre i et s_j^b sur la fibre j et où la force de liaison $\mathbf{f}_b^{(0)}$ dépend de k , la raideur en cisaillement par unité de surface de la liaison, $\bar{b}$ le degré de liaison moyen, θ_b l'angle entre les fibres en contact et $\Delta \tilde{\mathbf{u}}_b^{(1)}$ le déplacement relatif entre les fibres. En introduisant $Z = B/V = n\bar{z}/2$ le nombre de liaisons par unité de volume et n le nombre de fibres par unité de volume N/V , le tenseur de contraintes $\tilde{\sigma}$ peut s'écrire :

$$\tilde{\sigma} = k \frac{n\bar{z}}{2} \bar{b}^2 d_{max}^2 \frac{1}{B} \sum_{b \in \mathcal{B}} \frac{1}{|\sin \theta_b|} \tilde{\xi}_b \otimes \Delta \tilde{\mathbf{u}}_b^{(1)}. \quad (5)$$

Cette expression explicite le rôle d'un certain nombre de paramètres microstructuraux sur le tenseur des contraintes macroscopique. Il est par ailleurs possible de montrer que $\tilde{\sigma}$ est une fonction linéaire de la déformation macroscopique $\tilde{\varepsilon}$:

$$\tilde{\sigma} = \mathbb{C} : \tilde{\varepsilon} \quad (6)$$

où le tenseur de raideur élastique $\mathbb{C}$ est symétrique et défini positif. Les champs cinématiques inconnus, c'est-à-dire les $\Delta \tilde{\mathbf{u}}_b^{(1)}$, ont été obtenus en résolvant le problème d'auto-équilibre local délivré par la méthode d'homogénéisation sur des VER générés numériquement (voir figure 8). Dans ces VER numériques, il est possible de faire varier l'orientation des fibres dans le plan des milieux fibreux ainsi que la fraction volumique de fibres Φ . Le degré de liaison moyen $\bar{b}$ a été quantitativement calé sur les données expérimentales (figure 8(b)) avec

$$\bar{b} = \alpha(\phi - \phi_0), \quad (7)$$

où, pour les papiers modèles, $\alpha = 1.2$ et $\phi_0 = 0.02$, c'est-à-dire une valeur de fraction volumique de fibres pour laquelle le nombre de liaisons entre fibres est inférieur à 2 selon les prédictions du tube modèle (figure 8(c)).

Une expression analytique du tenseur de raideur élastique $\mathbb{C}$ a alors pu être établie. En tenant compte de l'expression de $n = 4\phi/d_{max}d_{min}l$, de l'équation (5) et en introduisant les rapports de forme suivants des fibres $r_1 = l/d_{max}$ et $r_2 = d_{max}/d_{min}$:

$$\mathbb{C} = \frac{4\alpha k l \phi^2 \left(\frac{2}{\pi} r_1 \varphi_1 + \varphi_2 + 1 \right) \bar{b}^2 r_2}{3\pi \varphi_1} \left(1 - \frac{1}{4\phi \left(\frac{2}{\pi} r_1 \varphi_1 + \varphi_2 + 1 \right)} \right) \mathbb{A} \quad (8)$$

où

$$\mathbb{A} = \frac{1}{N} \sum_{i \in \mathcal{N}} \tilde{\mathbf{p}}_i \otimes \tilde{\mathbf{p}}_i \otimes \tilde{\mathbf{p}}_i \otimes \tilde{\mathbf{p}}_i, \quad (9)$$

est le tenseur d'orientation des fibres du quatrième ordre (Advani et Tucker, 1987). L'expression précédente montre la dépendance de la raideur des papiers avec la géométrie (l, r_1, r_2), la fraction volumique (ϕ) et l'orientation ($\mathbb{A}, \varphi_1, \varphi_2$) des fibres ainsi qu'avec la raideur des liaisons (k) et du degré de liaison ($\bar{b}$). Le modèle analytique reproduit très correctement sur une large gamme de fraction volumique de fibres les prévisions du modèle numérique (code éléments discrets) données sur la figure 8(d). Les modèles numériques et analytiques présentent un bon accord avec les résultats expérimentaux (figures 8(e,f)) moyennant une raideur des liaisons $k = 2200 \text{ N mm}^{-3}$, seul paramètre du modèle non mesuré expérimentalement. Notons qu'il n'y a pas encore à l'heure actuelle de mesures expérimentales de ce paramètre pour des liaisons entre fibres papetières.

5 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Le papier et nombre de non-tissés et biocomposites en développement sont formés de réseaux denses de fibres naturelles. Ces matériaux aux bonnes propriétés spécifiques sont intéressants dans de nombreuses applications. Leur optimisation est pourtant freinée par l'incapacité des modèles actuels à prévoir leurs propriétés physiques et mécaniques du fait de la méconnaissance des liens entre ces propriétés, la microstructure fibreuse enchevêtrée et la physique à l'échelle des fibres.

L'extraction des données microstructurales concernant les fibres et les liaisons entre fibres a été faite de manière visuelle et manuelle à partir d'images tridimensionnelles de papiers modèles acquises par microtomographie à rayons X. Cette technique permet de construire des distributions pour un grand nombre de paramètres géométriques de ces objets. Nous avons essayé d'aller plus loin dans ce type d'analyse en suivant individuellement l'évolution géométrique de quelques fibres identifiées au sein de différents papiers soumis à des variations d'humidité relative. Cette analyse nous semble constituer un apport important dans l'analyse microstructurale et des micromécanismes de déformation des papiers et plus généralement des milieux fibreux.

Le deuxième volet de ce travail s'est appuyé sur la théorie de l'homogénéisation des structures périodiques discrètes pour modéliser le comportement élastique macroscopique équivalent de ces milieux. Celle-ci a été réalisée en s'appuyant sur les analyses microstructurales précédentes sur le comportement des fibres et de liaisons vues respectivement comme rigides et élastiques. Un premier modèle numérique a été proposé sur la base de simulations numériques discrètes réalisées en utilisant pour cela des réseaux fibreux générés numériquement. Un second modèle, analytique et très compact, a été construit en se basant sur un ensemble d'hypothèses supplémentaires concernant les microstructures, touchant plus particulièrement les liaisons, et sur la cinématique des fibres. Les deux modèles montrent l'influence très importante de la fraction volumique et de l'orientation des fibres, de la géométrie des liaisons et des fibres sur le comportement élastique macroscopique. Malgré leur simplicité, ces modèles décrivent très fidèlement les tendances mesurées expérimentalement pour l'évolution des modules élastiques des papiers modèles. Dans ces modèles, le seul paramètre inconnu est la raideur des liaisons. Ceci met en exergue la nécessité d'une meilleure connaissance des propriétés mécaniques des liaisons des réseaux fibreux encore relativement méconnues aujourd'hui. Notons que l'emploi de ces modèles est possible pour prédire le comportement de réseaux de nanofibrilles de cellulose (lire Martoia *et al.* dans ce recueil).

Plusieurs perspectives à ces travaux peuvent être évoquées :

(1) Les outils d'analyse d'images tridimensionnelles doivent être améliorées pour permettre l'identification individuelle des fibres et des liaisons dans les milieux fibreux, notamment ceux de fortes densités. À terme, ces outils devront permettre de caractériser individuellement les déformations des fibres et les liaisons à partir d'images acquises grâce à des essais de la déformation de ces matériaux

(2) Les techniques de caractérisation du comportement mécanique ou hygroexpansif des fibres et des liaisons individuelles doivent être améliorées. À l'échelle micrométrique, de nombreuses équipes développent actuellement des microrobots permettant la réalisation d'essais mécaniques sur des fibres individuelles de bois ou de papier permettant de répondre à ce challenge (lire Manship *et al.* dans ce recueil). Les techniques développées visent particulièrement à permettre la réalisation d'essais de traction, de flexion voire de compression sur le chant des fibres. Pour les liaisons, les travaux actuels visent à la réalisation d'essais d'extraction. Ces techniques procurent des résultats prometteurs. Cependant leur exploitation reste incomplète en raison des difficultés liées à l'analyse des déformations auxquelles sont soumis ces objets lors de ces essais. Un couplage de ces essais avec des techniques de mesures de champs de déplacement semble nécessaire pour progresser sur ce point. Par ailleurs, il serait opportun de pouvoir observer de manière simultanée les évolutions microstructurales induites dans ces objets. À l'échelle nanométrique, le problème de la caractérisation des propriétés mécaniques d'éléments tels que des nanofibrilles de cellulose s'avère encore plus ardu. Des essais mécaniques *in situ* sous AFM semblent réalisables pour appréhender la caractérisation mécanique des propriétés mécaniques de ces objets.

(3) La validation des modèles numériques et analytiques de comportement multi-échelles issus des approches de modélisations discrètes doit être poursuivie. Cette validation pourrait être menée à bien en comparant les prévisions des modèles avec des résultats d'essais mécaniques couplés à des techniques d'observations par analyse d'images pour une observation fine des mécanismes de déformation anisotropes des milieux fibreux.

6 REMERCIEMENTS

Cette étude a bénéficié du soutien de l'ESRF (projet de longue durée MA-127 «Heterogeneous fibrous materials»), de la région Rhône-Alpes, de l'ANR (projet ANAFIB 09-JCJC-0030) et du programme

RÉFÉRENCES

- Åslund P.E., Isaksson P., "A note on the nonlinear mechanical behavior of planar random network structures subjected to in-plane compression", *Comp. Mat.*, **45**, (2011), pp. 2697–2703.
- Advani S.G., Tucker C.L., "The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites", *J. Rheol.*, **3**, (1987), pp. 751–784.
- Altendorf H., Jeulin D., "3D directional mathematical morphology for analysis of fiber orientations", *Image Analysis and Stereology*, **28**, (2009), pp. 143–153.
- Dirrenberger J., "Effective properties of architected materials", PhD Thesis ParisTech (2012).
- Doi M., S. F. Edwards, "Dynamics of rod-like macromolecules in concentrated solution", *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, **74**, (1978), pp. 560–570.
- Eichhorn S.J., Baillie C.A., Zafeiropoulos N., Mwaikambo M.P., Ansell M.P., Dufresne A., Entwistle K.M., Herrera-Franco P.J., Escamilla G.C., Groom L., Hughes M., Hill C., Rials T.G., Wild P.M., "Current international research into cellulosic fibres and composites", *J. Mater. Sci.*, **36**, (2001), pp. 2107–2131.
- Guiraud O., Orgéas L., Dumont P.J.J., Rolland du Roscoat S., "Microstructure and deformation micro-mechanisms of concentrated fibre bundle suspensions: an analysis combining x-ray microtomography and pull-out tests", *J. Rheol.*, **56**, (2012), pp. 593–623.
- Kulachenko A., Denoyelle T., Galland S., Lindström S.B., "Elastic properties of cellulose nanopaper", *Cellulose*, **19**, (2012), pp. 793–807.
- Latil P., Orgéas L., Geindreau C., Dumont P.J.J., Rolland du Roscoat S., "Towards the 3D in situ characterisation of deformation micro-mechanisms within a compressed bundle of fibres", *Compos. Sci. Technol.*, **71**, 2011, pp. 480–488.
- Le Corre S., Caillerie D., Orgéas L., Favier D., "Behavior of a net of fibers linked by viscous interactions: theory and mechanical properties", *J. Mech. Phys. Solids*, **52**, (2004), pp. 395–421.
- Le Corre S., Dumont P., Orgéas L., Favier D., "Rheology of highly concentrated planar fiber suspensions", *J. Rheol.*, **49**, (2005), pp. 1029–1058.
- Le T.-H., Dumont P., Orgéas L., Favier D., Salvo L., Boller E., "X-ray phase contrast microtomography for the analysis of the fibrous microstructure of SMC composites", *Composites: Part A*, (2008), **39**, pp. 91–103.
- Marulier C., "Étude multi-échelles des couplages entre les propriétés hygroélastiques des papiers et leur microstructure", Thèse de l'université de Grenoble Alpes, 2013.
- Marulier C., Dumont P.J.J., Orgéas L., Caillerie D., Rolland du Roscoat S., "Towards the 3D analysis of pulp fibre networks at the fibre and bond levels", *Nordic Pulp and Paper Research Journal*, **28**, (2012), pp. 245–255.
- Orgéas L., Dumont P.J.J., Vassal J.P., Guiraud O., Michaud V., Favier D., "In-plane conduction of polymer composites plates reinforced with architected networks of copper fibres", *J. Mater. Sci.*, **47**, (2012), pp. 2932–2942.
- Picu R.C., "Mechanics of random fiber networks - A review", *Soft Matter*, **7**, (2011), pp. 6768–6785.
- Ranganathan S., Advani S.G., "Fiber-fiber interactions in homogeneous flows of non-dilute suspensions", *J. Rheol.*, **35**, (1991), pp. 1499–1522.
- Rolland du Roscoat S., Decain M., Thibault X., Geindreau C., Bloch J.-F., "Estimation of micro-structural properties from synchrotron X-ray microtomography and determination of the REV in papermaterials", *Acta Mater.*, **55**, (2007), pp. 2841–2850.
- Sampson W., "Materials properties of paper as influenced by its fibrous architecture", *Int. Mater. Rev.*, **54**, (2009), pp. 134–156.
- Toll. S., "Note: On the tube model for fiber suspensions", *J. Rheol.*, **37**(1), (1993), pp. 123–125.
- Uesaka T., "General formula for hygroexpansion of paper", *J. Mater. Sci.*, **29**, (1994), pp. 2373–2377.
- Viguié J., Dumont P.J.J., Mauret E., Rolland du Roscoat S., Vacher P., Desloges I., Bloch J.-F., "Analysis of the hygroexpansion of a lignocellulosic fibrous material by digital correlation of images obtained by X-ray synchrotron microtomography: application to a folding box board", *J. Mater. Sci.*, **46**, (2011), pp. 4756–4769.
- Viguié J., Latil P., Orgéas L., Dumont P.J.J., Rolland du Roscoat S., Bloch J.-F., Marulier C., Guiraud O., "Finding fibres and their contacts within 3D images of disordered fibrous media", *Compos. Sci. Technol.*, **89**, (2013), pp. 202–210.