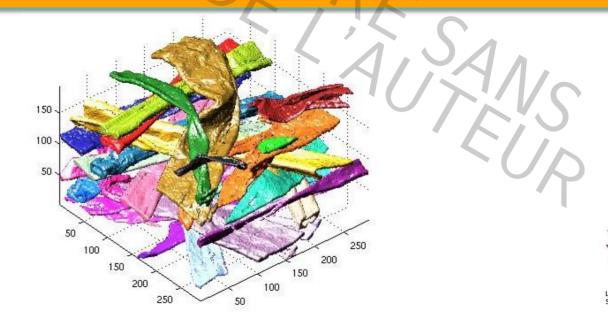




MICROSTRUCTURES ET COUPLAGES HYGRO-MÉCANIQUES DANS LES MATÉRIAUX À BASE DE FIBRES LIGNO-CELLULOSIQUES (PAPIERS, NON-TISSÉS ET FILMS)

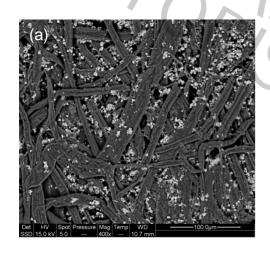
Pierre Dumont¹, Laurent Orgéas², Jérémie Viguié¹,², Sabine Rolland du Roscoat², Cyril Marulier¹,², Pierre Latil¹,², Florian Martoïa¹,²

¹Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers (LGP2) – CNRS – Université de Grenoble Alpes ²Laboratoire Sols, Solides, Structures, Risques – CNRS – Université de Grenoble Alpes

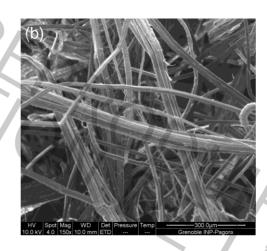




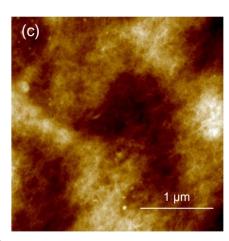
Réseaux de fibres enchevêtrées plus ou moins bien ordonnées



Papiers et cartons



Non-tissés



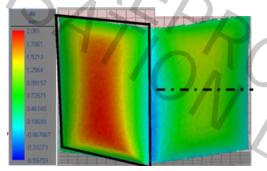
Films de nanofibrilles de cellulose

Réseaux de fibres enchevêtrées plus ou moins bien ordonnées





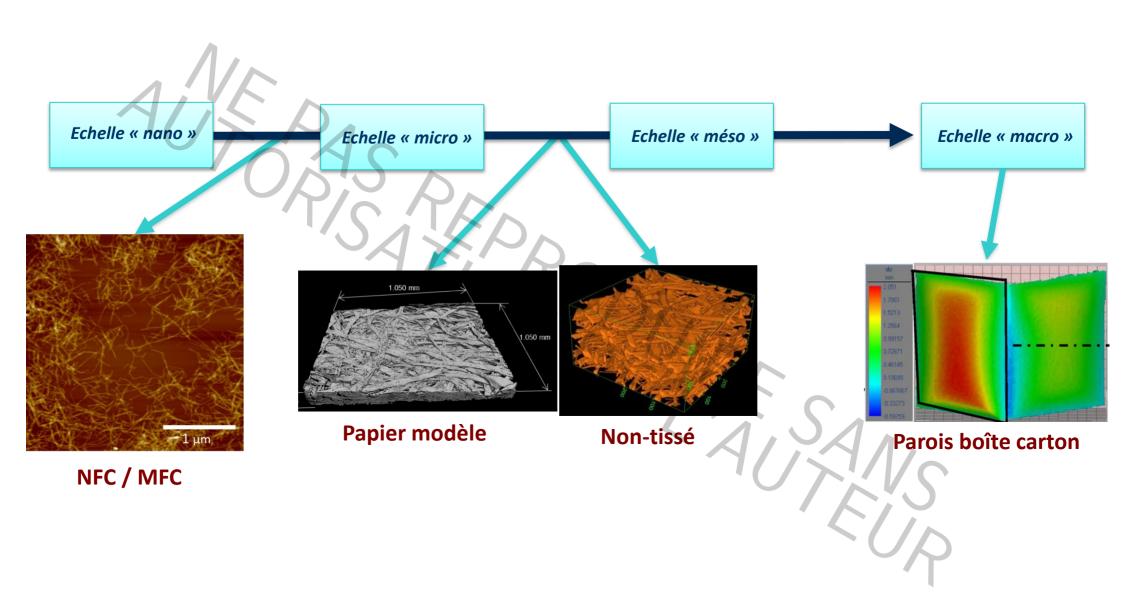






Applications

- Nanopapiers, mousses, aérogels, papiers, cartons, non-tissés, textiles, biocomposites pour
 - · Emballage (propriétés barrières et mécaniques)
 - Electroniques et énergie (supports flexibles, propriétés diélectriques ou conductrices)
 - Transport
 - Bâtiment
 - Industrie du sport
 - Ameublement...



Fibres

47 % HR \longrightarrow 80 % HR \longrightarrow 20 % HR \longrightarrow 50 % HR

Multi-matériaux

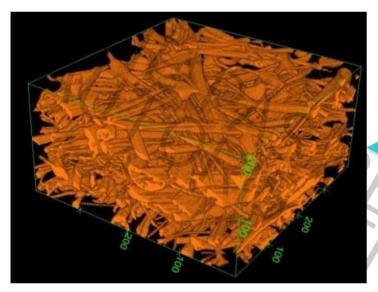
Comportement mécanique complexe :

- anisotrope
- non-linéaire (élasto-viscoplastique)
- couplages avec température et humidité

Géométrie et comportement mécanique affectés par les traitements d'extraction

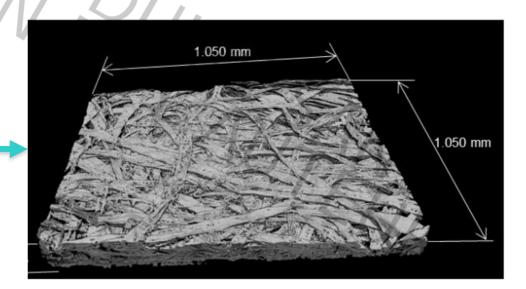


Liaisons entre fibres



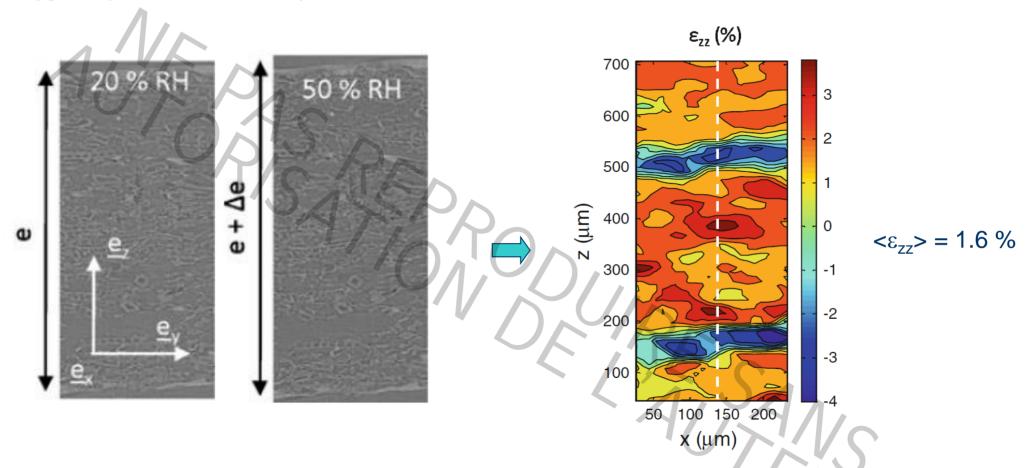
Liaisons par obstacle, liaisons frottantes par aiguilletage ou hydroliage & liaisons cohésives par thermoliage

Liaisons cohésives (nature chimique : liaisons de type hydrogène ou van der Waals)



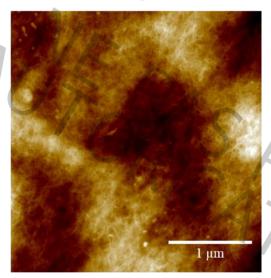
Mauvaise connaissance des propriétés morphologiques et mécaniques des liaisons

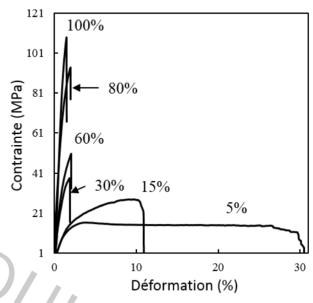
Hygroexpansion – carton plat

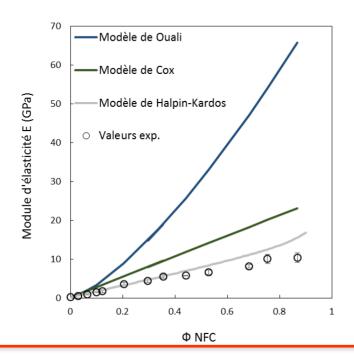


- **⊘** Observations à l'échelle du réseau
- → Manque d'observations expérimentales fines et directes au sein des microstructures fibreuses

Propriétés mécaniques – films composites de PEO - NFC

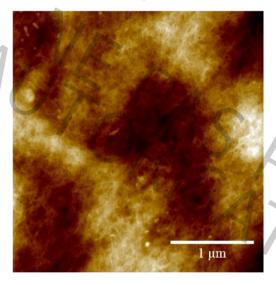


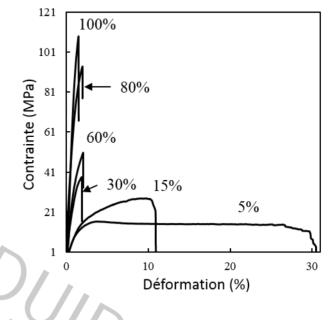


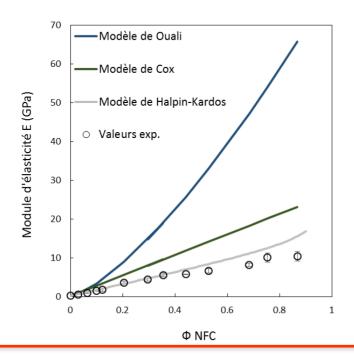


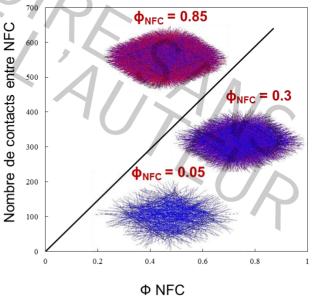
Hypothèses micromécaniques et microstructurales des modèles usuels inadaptées aux nanocomposites PEO – NFC

Propriétés mécaniques – films composites de PEO - NFC







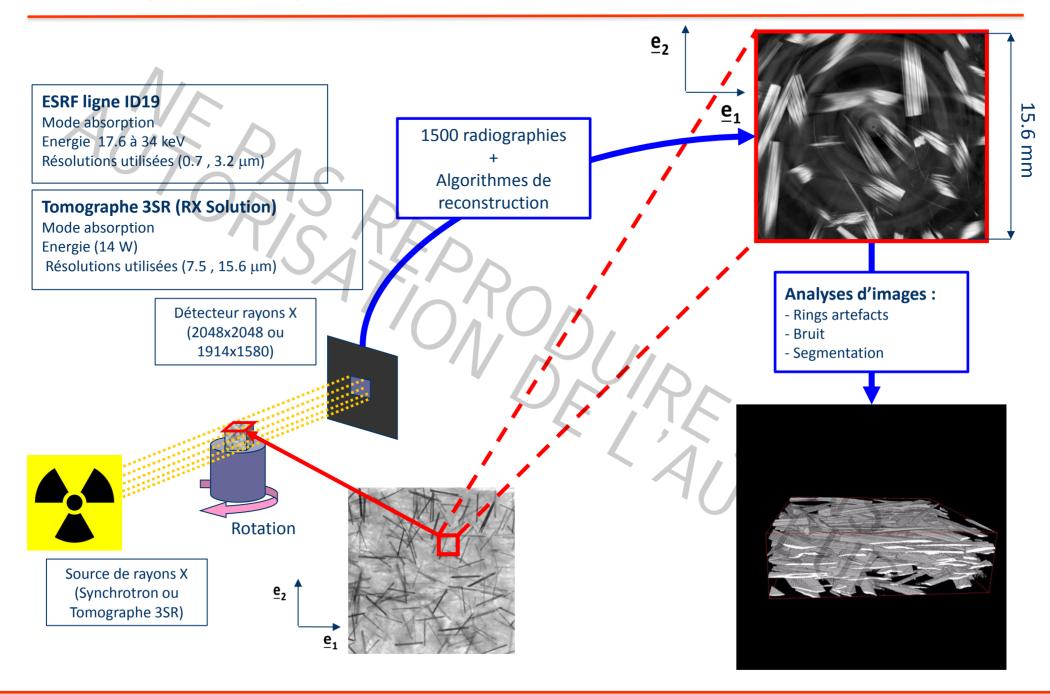


AUX PAS

UTILISATION D'IMAGES 3D POUR L'ANALYSE DES MICROSTRUCTURES :

EXEMPLE D'UN PAPIER MODELE

Microtomographie à rayons X

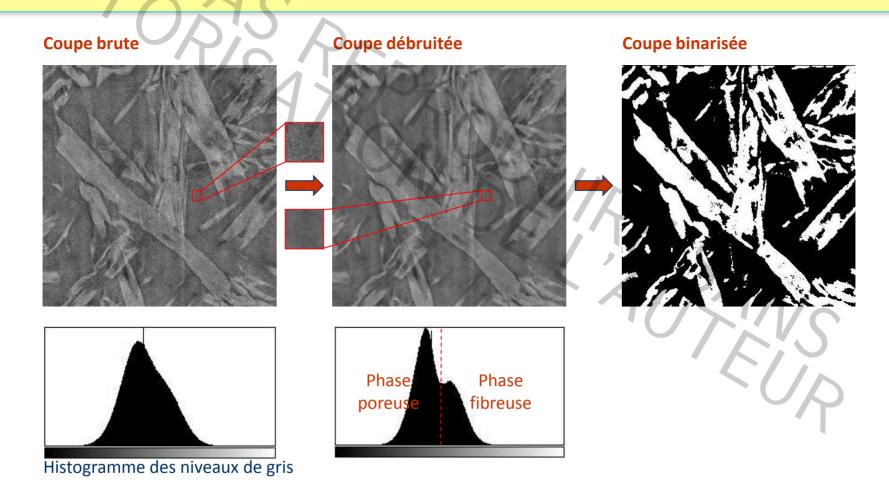


Microtomographie à rayons X

Débruitage et segmentation des images tridimensionnelles

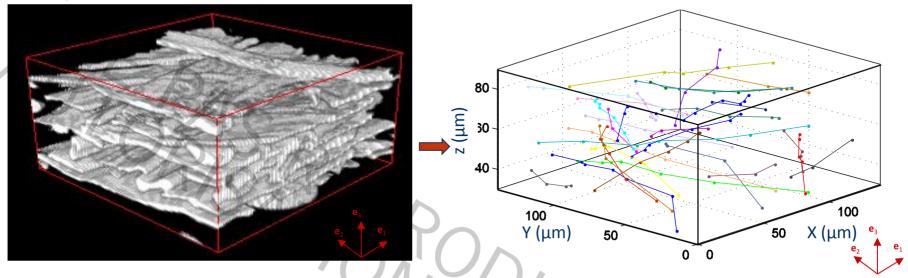
Objectif : séparer les phases fibreuse et poreuse de niveaux de gris proches

- Outils spécifiques de débruitage et de segmentation pour les papiers (Rolland du Roscoat, 2007).
- → Méthodes d'imagerie et de reconstruction basées sur le contraste de phase (mode Paganin)

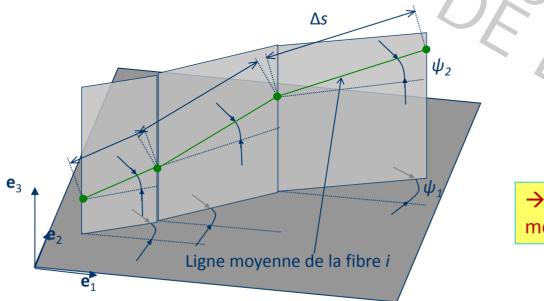


Descripteurs microstructuraux discrets à l'échelle des fibres et des liaisons

Ligne moyenne des fibres



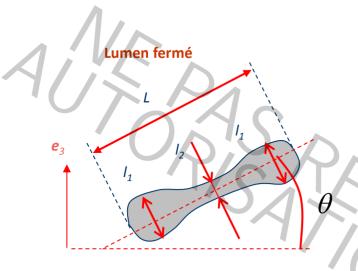
→ Les coordonnées des liaisons / contacts définissent la ligne moyenne



 \rightarrow Calcul des caractéristiques de la ligne moyenne : ψ_1 , ψ_2 et Δs

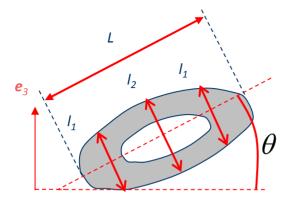
Descripteurs microstructuraux discrets à l'échelle des fibres et des liaisons

Dimensions caractéristiques des sections



- **L**: Largeur des fibres
- I_1 : épaisseur des sections proche des extrémités
- **l**₂: épaisseur des sections au milieu
- 0 : angle entre l'axe principal des sections et le plan du papier

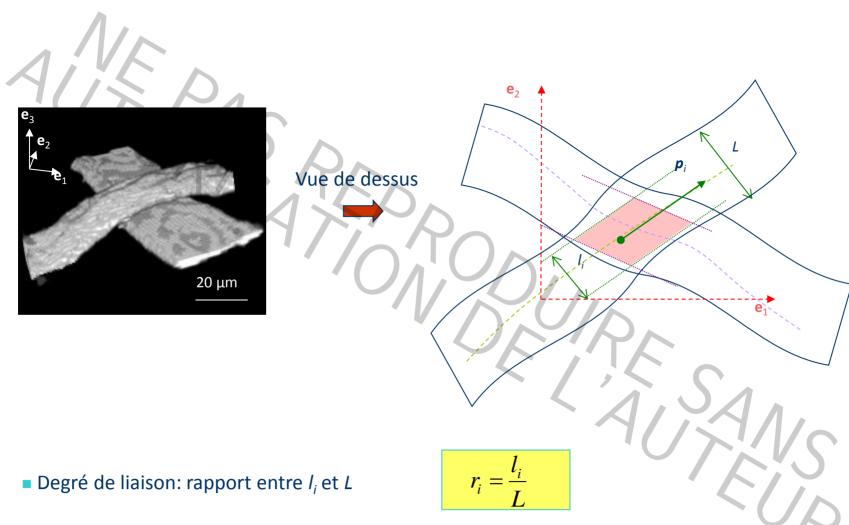
Lumen ouvert



- → 120 mesures pour obtenir des distributions stables
- → Deux types de sections:
 - Lumen fermé : $I_2 < I_1$
 - Lumen ouvert : $I_1 < I_2$

Descripteurs microstructuraux discrets à l'échelle des fibres et des liaisons

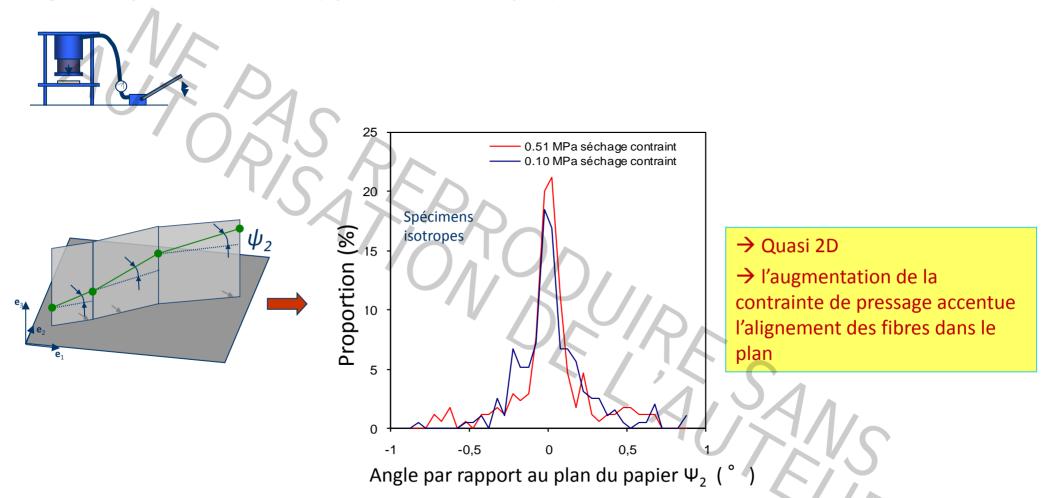
Dimensions des liaisons entre fibres



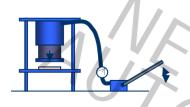
AUX PAS

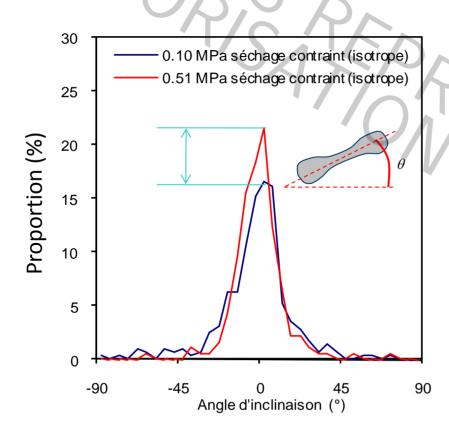
APPORT DES IMAGES TRIDIMENSIONNELLES POUR L'ANALYSE DE L'INFLUENCE DES OPERATIONS DE FABRICATION SUR LA MICROSTRUCTURE DES MILIEUX FIBREUX

Ligne moyenne des fibres (spécimens isotropes)



Orientation des sections droites des fibres (spécimens isotropes)

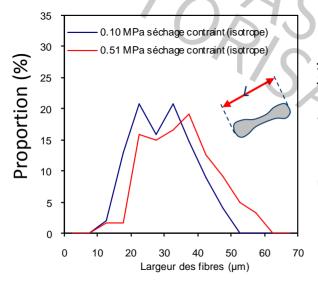


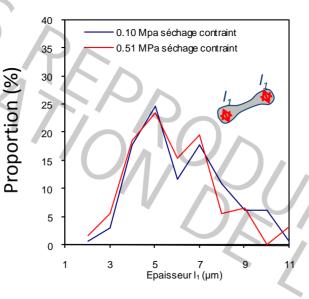


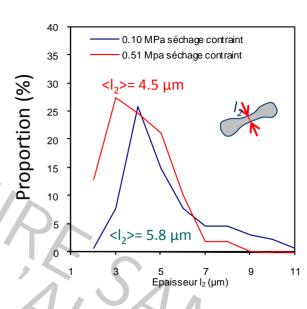
- → Majorité des axes principaux des sections dans le plan des papiers
- → Le fort pressage tend à amener l'axe principal des sections dans le plan des papiers

Déformation des sections droites des fibres (spécimens isotropes)









→ Augmentation de la largeur avec l'augmentation de la contrainte de pressage

→ Influence négligeable des conditions de pressage

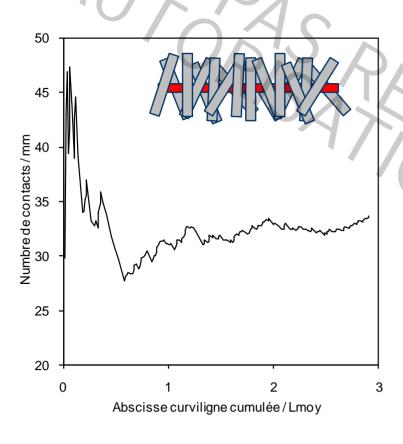
→ Le pressage tend à écraser les sections des fibres : disparition du lumen





Liaisons / contacts fibre-fibre

Nombre moyen de contacts par fibre



Beaucoup de contacts par fibres !!!
 Distance entre contacts de l'ordre de <L>!
 1 longueur cumulée de segments de fibres = une longueur de fibres suffisante pour déterminer le nombre de contacts moyen

Liaisons / contacts fibre-fibre

Comparaison à un modèle de prévision du nombre de contacts de type « tube model »

Hypothèses du modèle

- ■Fibres droites de longueur l
- Axe principal des sections contenu dans le plan
- Répartition homogène des fibres dans le plan
- Fibres à sections elliptiques (grand axe d_{max} ; petit axe d_{min})

Expression du nombre de contacts

$$\bar{z} = 4\alpha\Phi\left(\frac{2}{\pi}\frac{l}{d_{\text{max}}}\phi_1 + \phi_2 + 1\right)$$

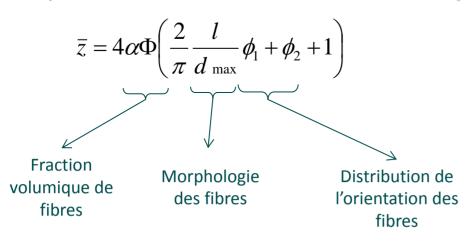
Liaisons / contacts fibre-fibre

Comparaison à un modèle de prévision du nombre de contacts de type « tube model »

Hypothèses du modèle

- Axe principal des sections contenu dans le plan
- Répartition homogène des fibres dans le plan
- Fibres droites de longueur /
- Fibres à sections elliptiques (grand axe d_{max} ; petit axe d_{min})

Expression du nombre de contacts



→ Tous ces paramètres sont connus expérimentalement!

Liaisons / contacts fibre-fibre

Comparaison à un modèle de prévision du nombre de contacts de type « tube model »

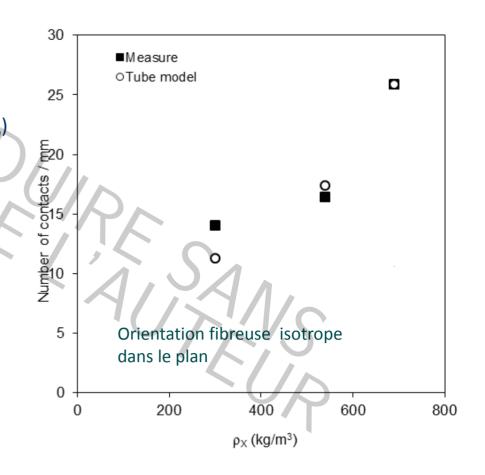
Hypothèses du modèle

- Axe principal des sections contenu dans le plan
- Répartition homogène des fibres dans le plan
- Fibres droites de longueur /
- Fibres à sections elliptiques (grand axe d_{max} ; petit axe d_{min})

Expression du nombre de contacts

$$\overline{z} = 4\alpha\Phi\left(\frac{2}{\pi}\frac{l}{d_{\text{max}}}\phi_1 + \phi_2 + 1\right)$$
 Fraction volumique de fibres Morphologie des fibres Distribution de l'orientation des fibres

→ Tous ces paramètres sont connus expérimentalement!



Liaisons / contacts fibre-fibre

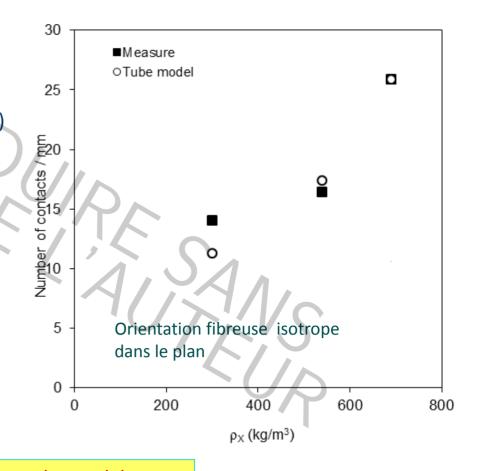
Comparaison à un modèle de prévision du nombre de contacts de type « tube model »

Hypothèses du modèle

- Axe principal des sections contenu dans le plan
- Répartition homogène des fibres dans le plan
- Fibres droites de longueur /
- Fibres à sections elliptiques (grand axe d_{max} ; petit axe d_{min})

Expression du nombre de contacts

$$\overline{z} = 4\alpha\Phi\left(\frac{2}{\pi}\frac{l}{d_{\max}}\phi_1 + \phi_2 + 1\right)$$
 Fraction volumique de fibres Morphologie des fibres Distribution de l'orientation des fibres



Fibres à orientation isotrope dans le plan : bonne prévision du « tube model »

Liaisons / contacts fibre-fibre

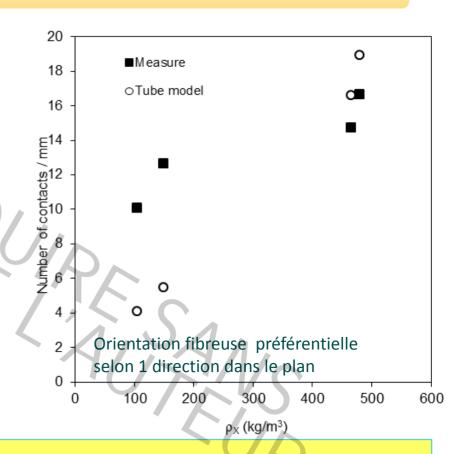
Comparaison à un modèle de prévision du nombre de contacts de type « tube model »

Hypothèses du modèle

- Axe principal des sections contenu dans le plan
- Répartition homogène des fibres dans le plan
- Fibres droites de longueur /
- Fibres à sections elliptiques (grand axe d_{max} ; petit axe d_{min})

Expression du nombre de contacts

$$\bar{z} = 4\alpha\Phi\left(\frac{2}{\pi}\frac{l}{d_{\text{max}}}\phi_1 + \phi_2 + 1\right)$$



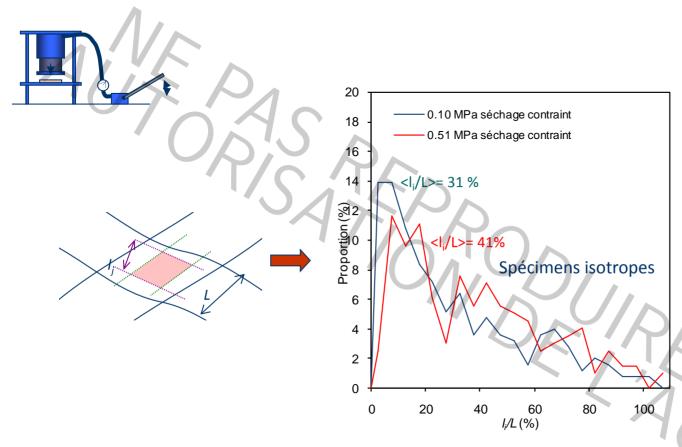
Cas isotrope

→ Bonne prévision du « tube model »

Cas orienté

→ Prévisions sous estimées pour les faibles masses volumiques → cause possible : fibres plus ou moins vrillées

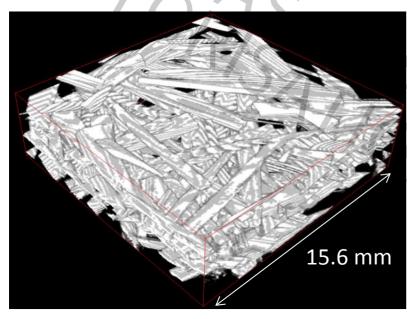
Degré de liaison (spécimens isotropes)



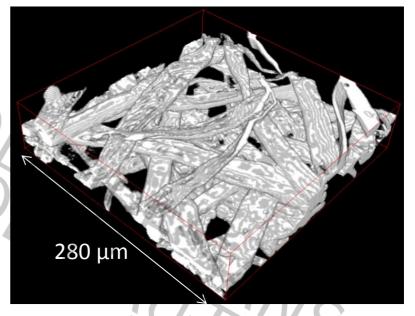
- → La majorité des liaisons sont partielles : entre 30 et 40%
- → Le fort pressage augmente le degré de liaison

VERS L'AUTOMATISATION DES TECHNIQUES D'ANALYSE D'IMAGES POUR L'INDIVIDUALISATION DES FIBRES ET DES CONTACTS

→ Identifier automatiquement les fibres et les contacts dans les images tridimensionnelles



Mèches de fibres de verre (tomographe de laboratoire (3SR), 1 voxel = 30 x 30 x 30 μ m³)

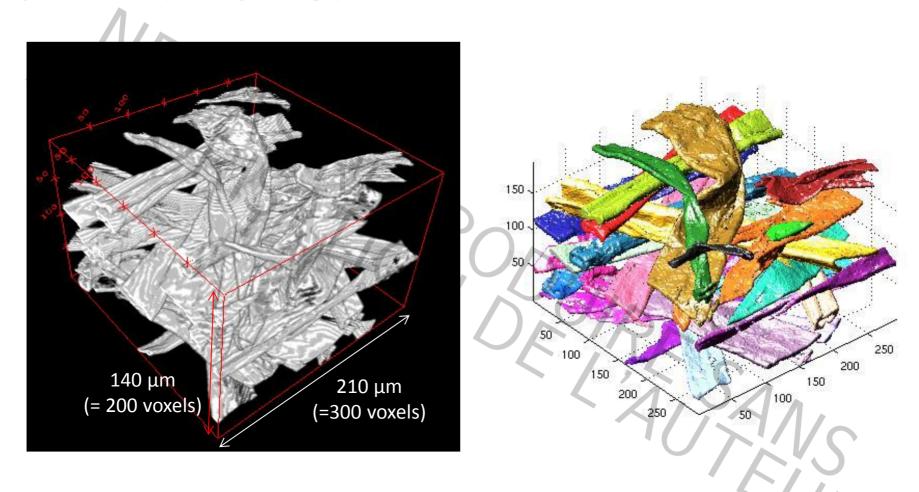


Papier modèle de faible grammage (ESRF, ligne ID 19), 1 voxel = 0.7 x 0.7 x 0.7 μ m³)

→ Pas de méthode efficace pour identifier les fibres et les contacts

Méthode d'identification **Orientation locale** des voxels de la phase fibres à partir de cartes de distances directionnelles Critère sur l'homogénéité de $C_p > 0.98$ l'orientation Seuillage, labellisation Altendorf & Jeulin, 2009 Croissance des Viguié et al., 2013 zones labellisées

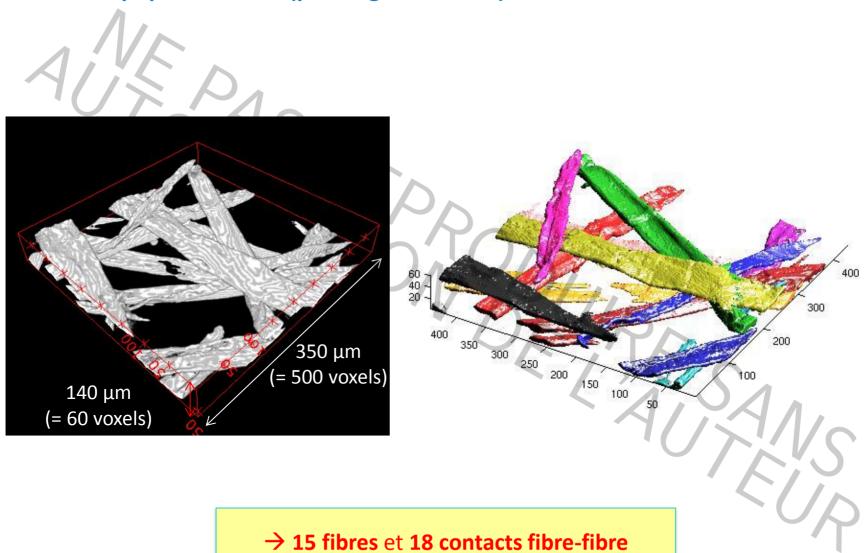
Papier modèle (faible pressage)



Identification des fibres tortueuses à sections droites complexes

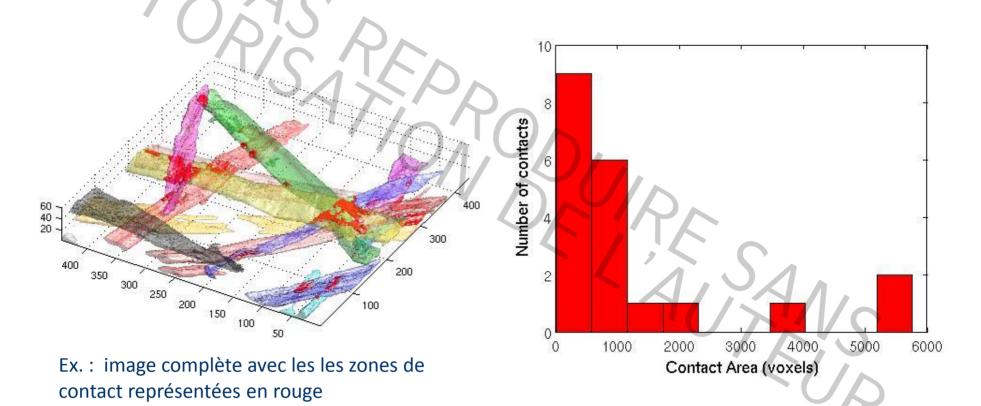
→ 30 fibres and 32 contacts fibre-fibre identifiés

Résultats – papier modèle (pressage standard)



Résultats – papier modèle (pressage standard)

Distribution des aires des contacts



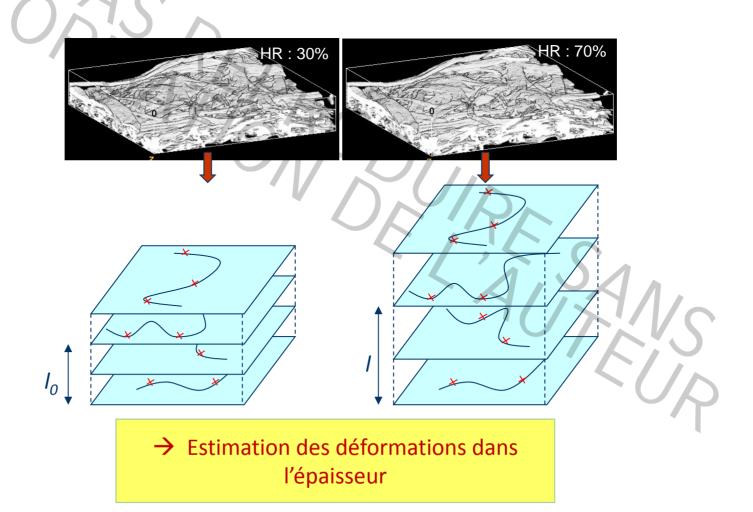
→ Grandes surfaces de contact (effet du pressage)

UTILISATION D'IMAGES 3D POUR L'ANALYSE DES MICROMECANISMES DE **DEFORMATION: EXEMPLE DE L'HYGROEXPANSION**

Hygroexpansion

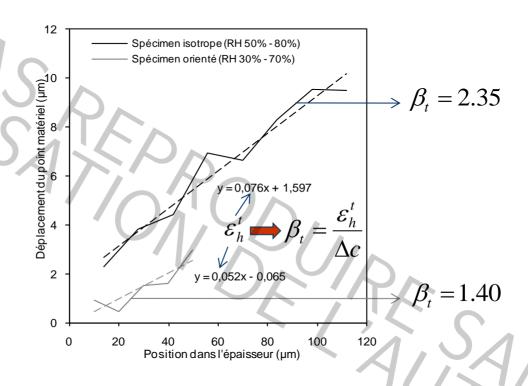
Hygroexpansion selon l'épaisseur

Suivi manuel de points matériels de fibres soumis à différentes humidités relatives → HR = 30 → 70 %, HR = 50 → 80 %



Hygroexpansion

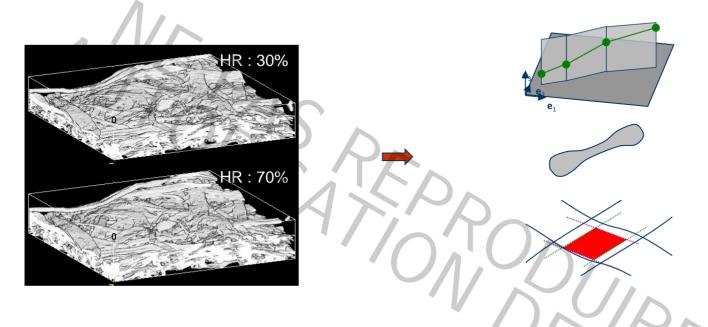
Hygroexpansion selon l'épaisseur



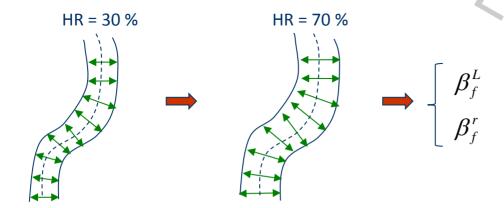
- $\rightarrow \beta_t$ au moins 10 fois plus grand que β_L
- → Forte hygroexpansion dans l'épaisseur de l'échantillon

Hygroexpansion

Hygroexpansion à l'échelle des fibres

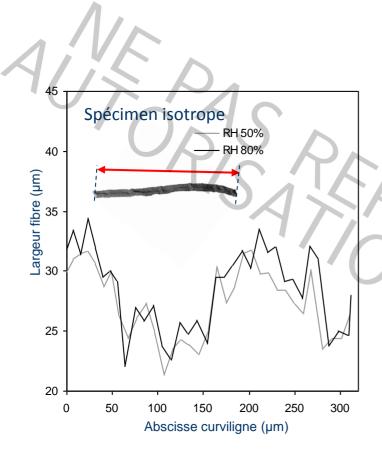


→ Construction des fonctions de distribution des largeurs de fibre



- → Suivi de la largeur de fibres isolées dans le réseau 3D
- → Estimation des coefficients d'hygroexpansion transverse et longitudinal de la fibre dans le réseau fibreux

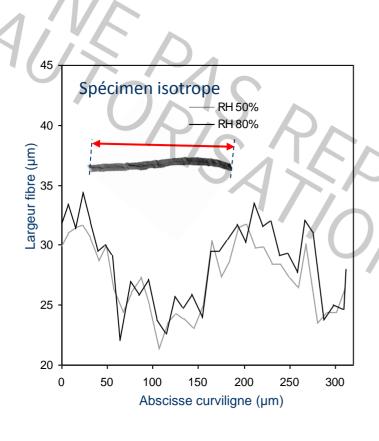
Fibres isolées dans le réseau

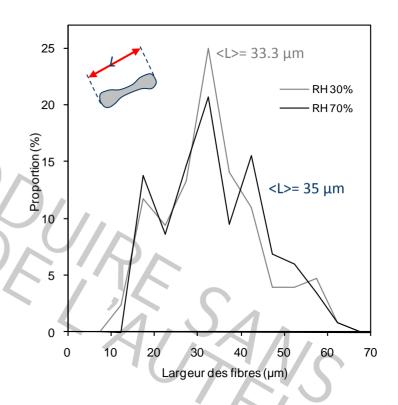


- → Augmentation de <L> avec HR
- \rightarrow Faibles variations de la longueur de la ligne moyenne \rightarrow β^f_L très faible : entre 0.01 et 0.1

Fibres isolées dans le réseau

Distribution de propriétés dans le réseau





- → Augmentation de <L> avec HR
- \rightarrow Faibles variations de la géométrie de la ligne moyenne \rightarrow β^f_L très faible : entre 0.01 et 0.1

- \rightarrow Variation de <L> de l'ordre de 1 µm pour un saut de 30 40 % de HR
- $\rightarrow \beta^{f}_{r}$ varie entre 0.8 et 1.8

→ Comment se transmet l'hygroexpansion des fibres par l'intermédiaire des liaisons au réseau ?

Modèle de Uesaka → Lie l'hygroexpansion micro des fibres à l'hygroexpansion macro des papiers

Sens marche: $\beta_{MD} = \beta_f^L + b_1 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Sens travers : $\beta_{CD} = \beta_f^L + b_2 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Epaisseur: $\beta_t = \beta_f^r - b_3 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

→ Comment se transmet l'hygroexpansion des fibres par l'intermédiaire des liaisons au réseau ?

Modèle de Uesaka → Lie l'hygroexpansion micro des fibres à l'hygroexpansion macro des papiers

Sens marche: $\beta_{MD} = \beta_f^L + b_1 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Sens travers : $\beta_{CD} = \beta_f^L + b_2 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Epaisseur: $\beta_t = \beta_f^r - b_3 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Echelle macro

→ Comment se transmet l'hygroexpansion des fibres par l'intermédiaire des liaisons au réseau ?

Modèle de Uesaka → Lie l'hygroexpansion micro des fibres à l'hygroexpansion macro des papiers

Sens marche: $\beta_{MD} = \beta_f^L + b_I (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Sens travers: $\beta_{CD} = \beta_f^L + b_2 \left(\beta_f^r - \beta_f^L\right)$

Epaisseur: $\beta_t = \beta_f^r - b_3(\beta_f^r - \beta_f^L)$

Echelle micro

→ Comment se transmet l'hygroexpansion des fibres par l'intermédiaire des liaisons au réseau ?

Modèle de Uesaka → Lie l'hygroexpansion micro des fibres à l'hygroexpansion macro des papiers

 b_1 , b_2 et b_3 décrivent la capacité des liaisons à transmettre

l'hygroexpansion de la fibre au réseau

Sens marche: $\beta_{MD} = \beta_f^L + b_1 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Sens travers : $\beta_{CD} = \beta_f^L - b_2 (\beta_f^r - \beta_f^L)$

Epaisseur: $\beta_t = \beta_f^r - b_3(\beta_f^r - \beta_f^L)$

A

→ Comment se transmet l'hygroexpansion des fibres par l'intermédiaire des liaisons au réseau ?

Modèle de Uesaka → Lie l'hygroexpansion micro des fibres à l'hygroexpansion macro des papiers

Sens marche:
$$\beta_{MD} = \beta_f^L + b_1 (\beta_f^r - \beta_f^L)$$

Sens travers :
$$\beta_{CD} = \beta_f^L + b_2 (\beta_f^r - \beta_f^L)$$

Epaisseur:
$$\beta_t = \beta_f^r - b_3 (\beta_f^r - \beta_f^L)$$

 b_1 , b_2 et b_3 décrivent la capacité des liaisons à transmettre

l'hygroexpansion de la fibre au réseau

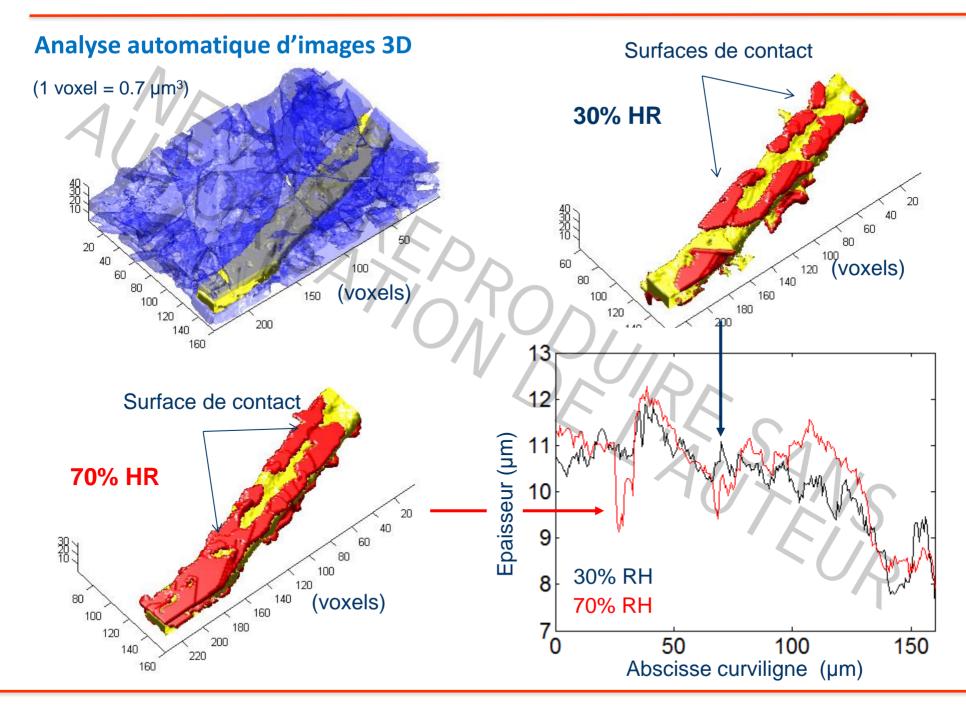
Dans le plan des papiers

$$b_1 \approx 0$$
 et $b_2 \approx 0,008 \rightarrow$ Valeurs très faibles

- → L'hygroexpansion dans le plan est dominée par l'hygroexpansion longitudinale des fibres!
- Dans l'épaisseur des papiers

$$b_3 \approx -0.08 \rightarrow \text{négatif car}$$
 $\beta_t > \beta_f^r$

- \rightarrow L'hygroexpansion dans l'épaisseur n'est pas uniquement due à β_r^f
- → Probablement combiné à des déformations hors plan des fibres



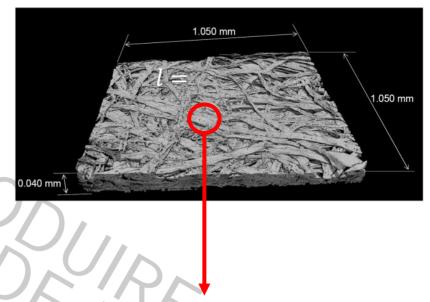


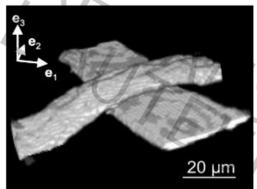
Description microscopique - Hypothèses

- Réseau de fibres de papier : réseau discret
 - Dimensions typiques $l \ll L$
 - Paramètre de séparation des échelles

$$\varepsilon = \frac{l}{L} \ll 1$$

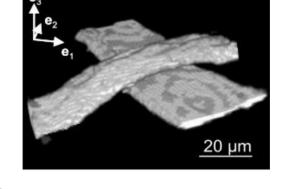
- Réseaux 3D de fibres à orientation plane 2D
- **Fibres** = barres rigides
- **Liaisons** = zones déformables élastiques





Description microscopique – Hypothèses

- Réseau de fibres de papier : réseau discret
 - Liaisons = zones déformables élastiques

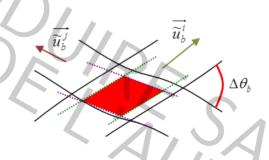


- Force de réaction

$$\overrightarrow{\widetilde{f}_b} = k \frac{\overline{b}^2 d_{\text{max}}^2}{\left|\sin \theta_b\right|} \Delta \overrightarrow{\widetilde{u}_b}$$

- Moment de réaction

$$M_b = k \frac{\pi \overline{b}^2 d_{\text{max}}^4}{4 |\sin \theta_b|^2} \Delta \theta_b$$

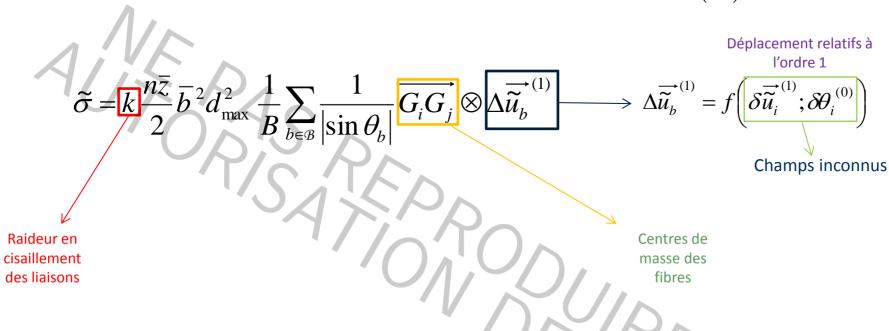


- Equations d'équilibre adimensionnelles d'une fibre b

$$\begin{cases} \sum_{b \in \mathcal{B}_i} \overrightarrow{\widetilde{f}_b^*} = \overrightarrow{\widetilde{0}} \\ \mathcal{M} \sum_{b \in \mathcal{B}_i} M_b^* \overrightarrow{e_3} = \sum_{b \in \mathcal{B}_i} S_i^b \overrightarrow{\widetilde{f}_b^*} \times \overrightarrow{\widetilde{p}_i} \end{cases} \quad \text{avec}$$

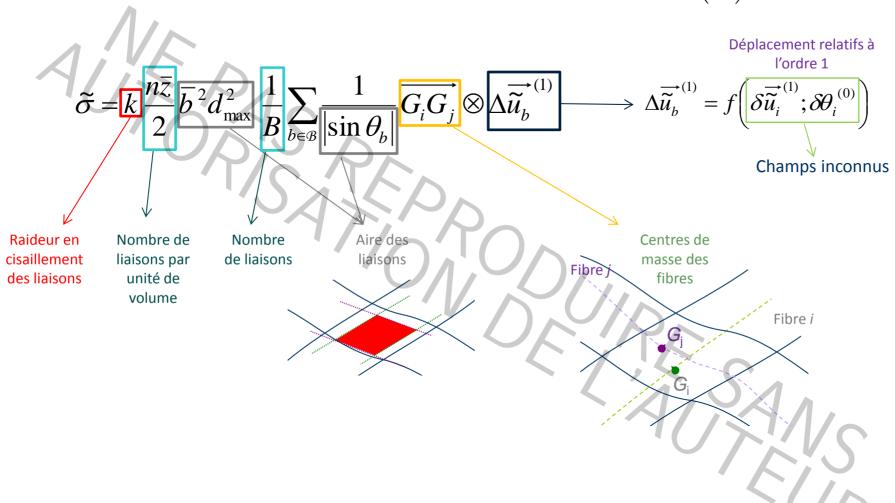
$$\mathcal{M} = \frac{\pi d_{\text{max}}^2 \Delta \theta_c}{4|\sin \theta_c|^2 l \Delta \widetilde{u}_c}$$

Tenseur des contraintes macroscopique équivalent - cas $\mathcal{M} = O(\varepsilon^2)$



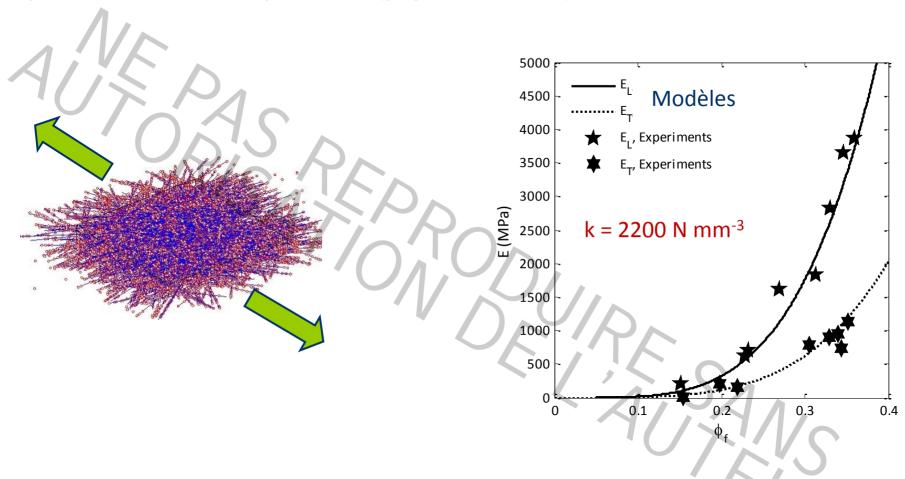
- Champs inconnus, solutions de l'auto-équilibre du VER
- → Rôle explicite de la microstructure sur les propriétés macroscopiques
- ightarrow Accès au tenseur de rigidité élastique $\tilde{\sigma} = \tilde{C} : \hat{\varepsilon}$

Tenseur des contraintes macroscopique équivalent - cas $\mathcal{M} = O(\varepsilon^2)$



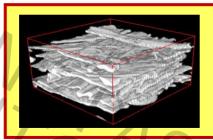
- → Champs inconnus, solutions de l'auto-équilibre du VER
- → Rôle explicite de la microstructure sur les propriétés macroscopiques

Comparaison modèle – expériences (papiers orientés)



- → Une raideur de liaison de 2200 N mm⁻³ permet d'obtenir des prédictions de modèles très proches des données expérimentales
- → Valide les paramètres de la microstructure à prendre en compte pour décrire le comportement mécanique macroscopique

Conclusion

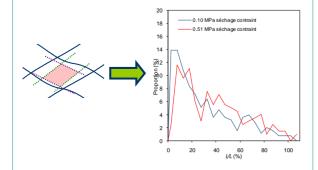


Analyse d'images 3D

- Accès à un grand nombre de descripteurs des fibres et des liaisons dans le réseau
- Minimise le nombre de dispositifs d'études

Descripteurs

- → Sur des éléments individuels dans le réseau
- → Quantification des propriétés impactant les propriétés élastiques macro

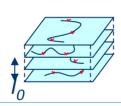


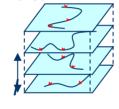
Influence des conditions d'élaboration

- →Les fibres sont sous forme de rubans contenus dans le plan du papier
- →Nombre très important de contacts par fibre
- → Les aires des liaisons partielles

Influence de l'humidité relative

- → Nouvelles approches de l'étude de l'hygroexpansion
 - dans l'épaisseur
 - sur les fibres





Validation ou alimentation de modèles

Nombre de contacts

- → Tube model bien adapté
- → Prise en compte du vrillage des fibres

Hygroexpansion

- → Mise en évidence des liens entre propriétés hygroscopiques anisotropes des fibres et les propriétés macro
- → Mise en évidence du rôle majeur de l'hygroexpansion longitudinale des fibres sur l'hygroexpansion macro

Elasticité

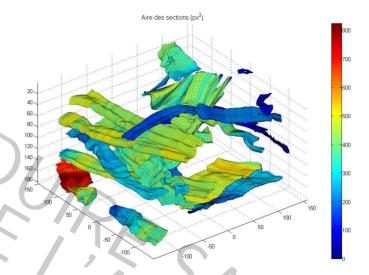
→ Importance de la microstructure et des paramètres élastiques des liaisons

Perspectives

Analyse d'images tridimensionnelles de milieux fibreux complexes

Caractériser

- la géométrie des sections droites des fibres
- la courbure des lignes moyennes des fibres
- l'orientation des contacts/liaisons fibre-fibre...



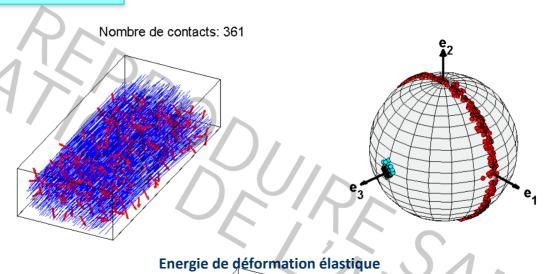
Aire des sections droites des fibres le long de leur ligne moyenne

Perspectives

Analyse d'images tridimensionnelles de milieux fibreux complexes

Mise en place d'une chaîne de traitement d'images 3D pour mesures de microstructures et de champs cinématiques





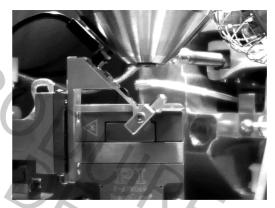
Perspectives

Essais micromécaniques sur fibres et liaisons

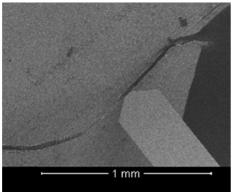
Mise en place d'outils de microrobotique pour essais micromécaniques (compression, flexion) avec observations des surfaces des fibres et in situ et environnement contrôlé



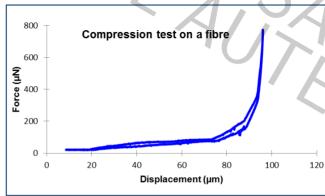
Système de microrobotique



Système de microbotique à l'intérieur d'une chambre ESEM



Essai de compression en ESEM



Force - Déplacement d'une fibre blanchie de résineux

Remerciements

- European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) : projet de longue durée MA-127 « Heterogeneous fibrous materials »
- ANR : projet ANAFIB 09-JCJC-0030

Olivier Guiraud

- Région Rhône-Alpes (cluster Macodev) : bourse de doctorat de Cyril Marulier
- Grenoble INP : bonus qualité recherche « Outils de microscopie et de microrobotique... »
- Programme européen WoodWisdom-Net PowerBonds

Novitom

| • Jean-Francis Bloch | LGP2 |
|---|---------------|
| Raphaël Passas | LGP2 |
| Brigitte Manship | LGP2 |
| Bertine Khélifi | LGP2 |
| Magalie Péralba | LGP2 |
| Stéphane Dufreney | LGP2 |
| Maxime Terrien | LGP2 |
| Mohammed Aichi | LGP2 |
| Christian Geindreau | 3SR lab |
| Pascal Charrier | 3SR lab |
| Denis Caillerie | 3SR lab |
| Steven Le Corre | Univ. Nantes |
| Thomas Joffre | Univ. Uppsala |
| Per Isaksson | Univ. Uppsala |
| • Elodie Boller | ESRF |
| Paul Tafforeau | ESRF |