Etudes multi-échelles des couplages entre les propriétés hygroélastiques des papiers et leur microstructure

Cyril Marulier

▶ **To cite this version:**

Cyril Marulier. Etudes multi-échelles des couplages entre les propriétés hygroélastiques des papiers et leur microstructure. Génie des procédés. Université de Grenoble, 2013. Français. NNT : 2013GRENI090 . tel-01204796

HAL Id: tel-01204796
https://theses.hal.science/tel-01204796

Submitted on 24 Sep 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Cyril MARULIER

Thèse dirigée par **Denis Caillerie** et
codirigée par **Pierre Dumont et Laurent Orgéas**

préparée au sein des **Laboratoires LGP2 et 3SR**
dans **l'École Doctorale Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production**

Étude multi-échelles des couplages entre les propriétés hygroélastiques des papiers et leur microstructure

Thèse soutenue publiquement le **17 octobre 2013**,
devant le jury composé de :

Dominique POQUILLON
Professeur, Université de Toulouse (Rapporteur)
Frédéric JACQUEMIN
Professeur, Université de Nantes (Rapporteur)
Steven LE CORRE
Professeur, Université de Nantes (Président)
Olivier ARNOULD
Maître de conférences, Université de Montpellier (Membre)
Denis CAILLERIE
Professeur, Université de Grenoble (Directeur de thèse)
Pierre DUMONT
Maître de conférences, Université de Grenoble (Directeur de thèse)
Laurent ORGEAS
Directeur de recherche, CNRS (Directeur de thèse)

Résumé

L'objectif de ce travail est d'étudier les couplages entre les propriétés hygroélastiques des papiers et leur microstructure. L'exploitation d'images de papiers modèles acquises par microtomographie à rayons X a permis de caractériser de manière inédite l'évolution des propriétés microstructurales de ces matériaux en fonction de leurs conditions d'élaboration ainsi que lors d'essais où ils ont été placés sous atmosphère à humidité relative contrôlée.
Ces résultats constituent un apport nouveau pour la connaissance de la nature statistique des descripteurs des propriétés des fibres (dimensions et orientation) et de leurs contacts (surface, degré de liaison), de l'architecture des réseaux fibreux que forment les papiers (nombre de contacts entre fibre) et pour la taille des volumes élémentaires représentatifs des propriétés microstructurales et élastiques de ces milieux. Sur la base de ces informations, différents modèles, plus ou moins raffinés, ont été élaborés dans le cadre de la théorie de l'homogénéisation des structures périodiques discrètes, pour décrire les propriétés mécaniques des papiers. Cette approche apporte un éclairage nouveau sur le rôle des liaisons entre fibres sur leur comportement mécanique.

Mots clefs : papier, fibres cellulosiques, opérations de formation, pressage et séchage, réseaux fibreux, microtomographie à rayons X, descripteurs microstructuraux, distribution des propriétés morphologiques des fibres et des liaisons, propriétés élastiques, hygroexpansion, VER microstructural et micromécanique, homogénéisation des structures périodiques discrètes.

Abstract

The objective of this work is to study the coupling between the hygroelastic properties of papers and their microstructure. The use of images of models acquired by X-ray microtomography papers allowed the characterization in an unprecedented manner of the evolution of microstructural properties of these materials according to their production conditions and during tests where they were placed in atmosphere at controlled relative humidity. These results provide a new contribution to the knowledge of the statistical nature of the descriptors of fibre properties (size and orientation) and their contacts (surface, bonding degree ratio), of the architecture of fibrous networks that papers constitute (number of fibre-to-fibre bonds) as well as of the size of the representative elementary volumes of microstructural and elastic properties. Based on this information, various models, more or less sophisticated, were developed in the framework of the theory of homogenisation of discrete periodic structures to describe the mechanical properties of paper. This approach sheds new light on the role of fibre-to-fibre bonds on the mechanical behaviour of these materials.

Key words : paper, cellulosic fires, forming, pressing and drying operations, fibrous networks, X-ray microtomography, microstructure descriptors, distribution of fibres' and bonds' properties, elastic properties, hygroexpansion, microstructural and micromechanical REV's, homogenisation of periodic discrete structures.

Sommaire

Résumés (français et anglais) **ii**

1 Introduction **1**
1.1 Contexte général de l'étude 1
1.2 Objectifs de la thèse 2
1.3 Organisation de l'étude et plan 4

I Bibliographie **7**

2 Le papier : matériaux de base et fabrication **9**
2.1 Introduction 9
2.2 Le bois et les plantes 10
2.3 Composition des fibres de bois et de papier 13
2.4 Procédés de fabrication de la pâte à papier 17
2.5 La fabrication industrielle du papier 22
2.6 Quelques papiers usuels et leur microstructure 24

3 Phénoménologie du comportement mécanique et hygroexpansif du papier **31**
3.1 Un comportement mécanique complexe 31
3.2 Influence des conditions d'élaboration sur l'élasticité des papiers 35
3.3 Sorption - désorption d'eau et conséquences sur la mécanique des papiers . . . 36
3.3.1 Hygroscopie du papier 36
3.3.2 Conséquences sur le comportement mécanique 40
3.3.3 Hygroexpansion 42
3.3.4 Tuilage des papiers 43
3.4 Conclusion 44

4 Microstructure et micromécanique des papiers **49**
4.1 La microstructure du papier : descripteurs usuels et moyens d'études 49
4.1.1 Paramètres microstructuraux et caractérisation 50

4.1.2 Microtomographie à rayons X . . . 53
4.2 Mécanique des fibres et des liaisons . . . 54
4.2.1 Comportement des fibres sèches . . . 54
4.2.2 Comportement des liaisons . . . 57
4.3 Approches micro-mécaniques du comportement du papier . . . 59

II Papiers modèles 69

5 Papiers modèles 71
5.1 Fibres de pâte à papier . . . 71
5.2 Élaboration des papiers modèles . . . 73
5.3 Échantillons de papiers modèles produits . . . 77
5.4 Observations 3D des microstructures . . . 83

III Analyse des microstructures fibreuses à l'échelle des fibres et des liaisons 85

6 Towards 3D analysis of the links between processing conditions, structural and mechanical properties of pulp fibre networks 87
6.1 Introduction . . . 88
6.2 Materials and experimental procedure . . . 90
6.2.1 Fibres . . . 90
6.2.2 Model papers processing . . . 91
6.2.3 Microstructure imaging . . . 91
6.2.4 Basic structural and mechanical properties . . . 92
6.3 Geometry of fibres and fibre-fibre bonds . . . 94
6.4 Results . . . 97
6.4.1 Influence of the wet pressing on the fibre cross section geometry and inclination . . . 97
6.4.2 Influence of the wet pressing on the distance between fibre-fibre bonds and the bond area surfaces . . . 99
6.5 Discussion . . . 101
6.6 Conclusion . . . 104

7 3D analysis of microstructural properties of paper fibrous networks at fibre and bond scale 111
7.1 Introduction . . . 112
7.2 Materials and experimental procedures . . . 114
7.2.1 Pulp fibres and model papers . . . 114
7.2.2 Basic mechanical measurements . . . 115

7.2.3 Optical measurements and relative bonded area . . . 115
7.2.4 Microstructure imaging by X-ray microtomography . . . 117
7.3 Descriptors of fibres and fibre-fibre bonds . . . 117
7.4 Microstructure and mechanical properties of the fibrous networks . . . 119
7.4.1 Porosity . . . 119
7.4.2 Mechanical behaviour . . . 121
7.5 Fibrous structure at the fibre and fibre-fibre bond scale . . . 121
7.5.1 Fibre centrelines . . . 121
7.5.2 Fibre cross sections . . . 123
7.5.3 Fibre-fibre contacts . . . 128
7.6 Discussion . . . 136
7.6.1 Formation of paper microstructures . . . 136
7.6.2 Weibull distributions . . . 137
7.6.3 Assessment of the number of fibre-fibre contacts . . . 140
7.6.4 Surface of fibre-fibre contacts: estimation of the Relative Bonded Area (RBA) . . . 142
7.7 Conclusion . . . 144

8 Multiscale analysis of the hygroexpansion behaviour of cellulosic fibre networks 151
8.1 Introduction . . . 152
8.2 Materials and methods . . . 152
8.2.1 Model papers . . . 152
8.2.2 Moisture content *vs.* relative humidity . . . 152
8.2.3 In-plane hygroexpansion measurement . . . 153
8.2.4 Tensile tests . . . 155
8.2.5 X-ray microtomography with *in situ* controlled RH . . . 155
8.3 Results . . . 158
8.3.1 In-plane hygroexpansion of fibrous networks . . . 158
8.3.2 Out-of-plane hygroexpansion of fibrous networks . . . 160
8.3.3 Hygroexpansion of individual fibres . . . 161
8.3.4 Hygroexpansion of a set of individual fibres . . . 165
8.3.5 Hygromechanical properties of fibrous networks . . . 165
8.4 Summary of main aspects and discussion . . . 167

IV Volumes élémentaires représentatifs des propriétés microstructurales et élastiques des réseaux fibreux 175

9 Representative Elementary Volumes of model papers for the fibre volume fraction 177
9.1 Introduction . . . 177
9.2 Model papers and X-ray microtomography images . . . 178

9.3 Estimation of microstructural properties . . . 178
9.3.1 Volume fraction . . . 178
9.3.2 Covariance length . . . 180
9.4 Preliminary results . . . 181
9.4.1 Through-thickness fibre content profiles . . . 181
9.5 Results . . . 182
9.5.1 In-plane isotropic papers: covariance length of the fibrous phase . . . 182
9.5.2 In-plane anisotropic papers: covariance length of the fibrous phase . . . 183
9.5.3 Size of the REV of the fibre content . . . 185
9.6 Conclusion . . . 188

10 REV for the elastic properties of model papers 191
10.1 Introduction . . . 191
10.2 Homogenisation . . . 192
10.2.1 Microstructural assumptions . . . 192
10.2.2 Upscaling . . . 193
10.2.3 Practical determination of the components of the elastic stiffness tensor 195
10.3 Size of the REV for linear elasticity . . . 195
10.3.1 Influence of the volume thickness . . . 195
10.3.2 In plane dimensions of the REV . . . 197
10.3.3 Estimation of in plane Young's moduli E_1 and E_2 . . . 202
10.4 Conclusion . . . 206

V Modélisation du comportement mécanique des réseaux fibreux 211

11 A simple discrete analysis to model the elasticity of paper 213
11.1 Introduction . . . 213
11.2 Problem statement and idealisation . . . 214
11.2.1 Microstructural assumptions . . . 214
11.2.2 Micromechanical assumptions . . . 216
11.3 Theoretical Upscaling . . . 218
11.4 Estimations of $\tilde{\mathbb{C}}$ . . . 221
11.4.1 Model 1 : Discrete Element Simulations . . . 221
11.4.2 Model 2 : Analytical Estimation . . . 222
11.5 Results . . . 225
11.5.1 In-plane orthotropy . . . 225
11.5.2 Numerical results . . . 226
11.5.3 Analytical *vs.* numerical models . . . 228
11.5.4 Comparison with experiments . . . 228
11.6 Conclusion . . . 228

12 Modélisation continue d'un réseau quasi périodique de poutres par homogénéisation discrète **245**
12.1 Introduction 245
12.2 Description du réseau de poutres 246
12.2.1 Numérotation et topologie 246
12.2.2 Géométrie et cinématique du réseau 246
12.2.3 Efforts et lois de comportement 247
12.2.4 Equilibre d'un réseau de poutres en interactions ponctuelles 249
12.3 Modélisation continue d'un réseau répétitif de poutres 250
12.3.1 Description topologique et géométrique d'un réseau répétitif de poutres 250
12.3.2 Suite de réseaux répétitifs 251
12.3.3 Développements asymptotiques 253
12.3.4 Problème en $\vec{u}^{(0)n}$ 255
12.3.5 Ordre suivant 256
12.3.6 Modèle macroscopique et contraintes équivalentes 258
12.3.7 Compléments sur le modèle macroscopique 259
12.4 Conclusion 260

VI Conclusion générale et perspectives **265**

13 Conclusion générale et perspectives **267**

Annexe **273**

A Comportement intégré d'une poutre **273**
A.0.1 Description géométrique et mécanique d'une poutre 273

Chapitre 1

Introduction

1.1 Contexte général de l'étude

Matériaux omniprésents et aux utilisations multiples, les papiers sont aujourd'hui incontournables dans nos sociétés. Le terme papier recouvre des matériaux aux usages extrêmement diversifiés : papiers pour l'impression et l'écriture (papier journal, papier offset...), papiers pour l'emballage (papier kraft, papier cadeau, papier pour ondulé, papier de soie...), papiers à usage sanitaire et domestique (papier toilette, papier essuie-tout, papier pour mouchoirs...), papiers spéciaux (papiers peints, papiers autocopiants, papiers adhésifs, papiers d'art, papiers pour support abrasif, papiers pour billets de banque...) etc. À chaque usage correspond un papier, c'est-à-dire un matériau fibreux cellulosique aux caractéristiques techniques adaptées et très différentes, dont l'élaboration demande des moyens spécifiques.
Les conditions environnementales de température et surtout d'humidité relative ont une très grande influence sur les propriétés mécaniques des papiers. Par ailleurs, les variations de température ou de teneur en eau engendrent des problèmes dits de stabilité dimensionnelle qui se traduisent par des déformations dans le plan des papiers mais aussi hors plan correspondant à un gonflement de la structure des papiers et à l'apparition de phénomènes d'ondulations, de cloques, de tuilage ou de cintrage, etc. Tous ces phénomènes hygromécaniques posent des problèmes majeurs aux utilisateurs des papiers, par exemple lors des opérations d'impression, de copie ou de transformation. Optimiser les propriétés des papiers vis-à-vis de ces phénomènes est crucial pour les industriels des domaines de la papeterie, de l'impression et de l'emballage.
Dans cette optique, de nombreuses approches ont été proposées pour modéliser ces phénomènes. Cependant ces approches manquent très souvent de fondements expérimentaux basés sur une observation fine et directe des phénomènes se déroulant au sein des microstructures des papiers. De nombreuses questions restent ainsi aujourd'hui en suspens sur les liens

entre propriétés microstructurales et comportements physiques et mécaniques des papiers, bien que les papiers soient des matériaux d'origine très ancienne, utilisés partout et par tous. À cela on peut donner une première explication qui se situe dans l'origine même des constituants de ces matériaux et plus particulièrement des fibres d'origine végétale qui en sont les constituants majoritaires. Ces fibres issues du bois ou de plantes annuelles ont des propriétés géométriques, mécaniques et physiques par essence très dispersées et complexes. Les questions en suspens s'expliquent également par les architectures et les propriétés complexes des réseaux que forment les enchevêtrements de fibres. Dans ces réseaux, les fibres forment entre elles, au niveau de leurs contacts, des jonctions aux propriétés physiques très fortes par le biais de liaisons chimiques de type hydrogène dont les propriétés restent très mal connues. Les configurations géométriques de ces réseaux, dans lesquels des charges et divers adjuvants sont souvent inclus, peuvent être extrêmement hétérogènes. Les procédés de fabrication des papiers entraînent souvent l'apparition de distributions inégales de fractions de fibres ou de charges dans la structure des papiers, des orientations anisotropes des fibres, etc. De ce fait, prévoir la réponse mécanique ou physique globale de ce genre d'assemblages fibreux est une tâche extrêmement ardue.
Pour y arriver, il faut tout d'abord décrire l'évolution des propriétés microstructurales des papiers en fonction de leurs paramètres d'élaboration, ce qui constitue un premier défi majeur. Face à la complexité microstructurale des papiers, décrire les micromécanismes de déformation qui s'y déroulent à l'échelle des fibres et des contacts entre fibres constitue un autre défi de taille. Apporter des réponses nouvelles sur ces deux aspects nécessite non seulement l'utilisation de moyens expérimentaux appropriés mais aussi le développement de nouvelles méthodes d'observation et la mise en place d'un cadre théorique spécifique pour la modélisation des propriétés thermo-hygromécaniques des papiers.

1.2 Objectifs de la thèse

Cette étude s'insère dans une démarche globale qui vise à mieux connaître les caractéristiques microstructurales et micromécaniques des papiers afin de pouvoir intégrer ces données dans des modèles permettant de prévoir la réponse mécanique de ces matériaux à une échelle supérieure.

Le premier objectif de ce travail consiste plus précisément à établir une description fine des microstructures des papiers, c'est-à-dire à mesurer d'une part un certain nombre de descripteurs donnant une image globale des propriétés géométriques des réseaux fibreux (porosité, surface spécifique, etc.) et, d'autre part la conformation et la géométrie des fibres et des contacts entre fibres.
Fournir un aperçu, même partiel, des changements microstructuraux et des mécanismes de déformation de ces éléments lorsque les papiers sont soumis à des chargements mécaniques

ou placés dans des environnements où les conditions d'humidité varient constitue un second objectif.
Répondre à ces deux premiers objectifs nécessite un choix judicieux du matériau d'étude et des techniques d'observation permettant l'obtention d'informations pertinentes sur la microstructure de ces matériaux :

- Il est nécessaire, face à la diversité et à la complexité des papiers produits industriellement, de restreindre le cadre de l'étude à des matériaux dont on contrôle les constituants et les opérations unitaires de fabrication. Dans notre étude, nous utiliserons des papiers modèles où un seul type d'essence de fibres est utilisé, l'étape de raffinage (voir chapitre 2) est supprimée et aucune adjonction de charges ou d'autres adjuvants n'est pratiquée. Les papiers modèles ont été fabriqués en agissant sur les opérations de formation, pressage et séchage, c'est-à-dire les opérations principales de fabrication des papiers, pour obtenir des microstructures fibreuses plus ou moins denses, plus ou moins orientées et examiner l'influence de ces paramètres sur leurs propriétés microstructurales et hygromécaniques.

- La description des propriétés morphologiques des réseaux et de leurs constituants s'appuie fortement sur l'utilisation de la microtomographie à rayons X, permettant d'obtenir des images en trois dimensions de papiers ayant subi des conditions de fabrication différentes. Le développement de méthodes originales de caractérisation des images issues de cet outil permet d'accéder à des propriétés morphologiques et mécaniques des fibres, des contacts et des réseaux. Cette technique d'imagerie et les techniques d'analyse d'images associées présentent plusieurs avantages : accès à la microstructure des papiers, accès aux propriétés morphologiques, géométriques, des fibres et des liaisons dans le réseau, possibilité de réaliser un nombre important de mesures permettant de construire des distributions de propriétés ainsi que la possibilité d'utiliser plusieurs fois le même échantillon reconstruit pour des expérimentations ou la réalisation de mesures différentes. Dans ce travail, l'influence des opérations unitaires ou des chargements hygromécaniques sur les propriétés microstructurales des papiers est quantifiée par des descripteurs permettant de rendre compte des distributions de propriétés de la morphologie des composants des papiers.

Le troisième objectif concerne l'estimation des propriétés élastiques effectives des papiers. Pour cela, nous utiliserons des réseaux fibreux représentatifs ou plus exactement des Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) pour les propriétés microstructurales et mécaniques des papiers sur lesquels nous résoudrons des problèmes d'équilibre définis dans le cadre des théories de changement d'échelles d'homogénéisation des milieux périodiques continus ou discrets.
Les choix des microstructures sur lesquels effectuer ces calculs sont multiples. Utiliser des mi-

crostructures réelles de papiers, obtenues à partir d'images de microtomographie à rayons X par exemple (voir ci-dessous), apparaît comme un choix naturel. Il pose néanmoins différents problèmes qui seront mis en évidence dans ce travail concernant notamment la taille et les temps de calculs mais surtout la représentativité des volumes testés vis-à-vis des propriétés microstructurales et mécaniques de ces matériaux fibreux. Une autre possibilité consiste à utiliser des modèles de réseaux fibreux simplifiés, discrets, dont la génération numérique est basée sur des hypothèses pourtant réalistes érigées à partir des observations effectuées précédemment sur la conformation et la géométrie des fibres et des liaisons entre fibres.

Ce type d'approche discrète qui semble particulièrement adaptée à la microstructure des papiers sera également testé dans ce travail.

1.3 Organisation de l'étude et plan

Les chapitres 2 à 4 suivants rassemblent une série de données blibliographiques sur les papiers :

- Le chapitre 2 traite des techniques de fabrication des papiers : les matériaux de base et leur composition ainsi que les procédés de fabrication de la pâte à papier et des papiers sont présentés. Cette description aboutit à la présentation de divers papiers communément utilisés, associée à une visualisation qualitative par Microscopie Électronique à Balayage (MEB) des microstructures fibreuses de ces matériaux afin d'en illustrer la diversité et la complexité.
- Le chapitre 3 recense divers travaux portant sur les comportements hygromécanique et hygroexpansif des papiers. Ce chapitre donne une vision phénoménologique de la complexité de ce type de comportements dans des matériaux comme les papiers. L'influence des conditions d'élaboration des papiers sur leur comportement mécanique et hygroexpansif est également soulignée.
- Dans le chapitre 4, le comportement des papiers est ensuite abordé selon un point de vue micromécanique. Sont tout d'abord présentés les descripteurs usuels et les moyens d'études des microstructures papetières, puis les modèles micro-mécaniques actuels du comportement du papier, ainsi que les connaissances actuelles sur le comportement des fibres et des liaisons.

Les chapitres 5 à 11 présentent ensuite le cœur de ce travail :

- Le chapitre 5 regroupe des données sur les fibres utilisées pour la fabrication des pa-

piers modèles et détaille les procédés d'élaboration de ces matériaux mis en œuvre.

- Le chapitre 6 se focalise plus particulièrement sur les techniques d'analyse d'images utilisées pour obtenir des descripteurs des réseaux fibreux, des fibres et des contacts entre fibres à partir des images tridimensionnelles. Quelques illustrations sur l'influence des paramètres d'élaboration sur l'évolution des descripteurs microstructuraux sont données. La méthode est ainsi appliquée à deux types de papiers modèles : l'un ayant subi un pressage fort et l'autre ayant subi un pressage faible.

- Dans le chapitre 7, cette étude est poursuivie et approfondie. La description statistique des modifications des propriétés microstructurales induites par les opérations de fabrication est analysée. Différents papiers sont étudiés : faiblement ou fortement pressés, séchés librement ou sous contraintes, avec des orientations des fibres dans le plan des papiers isotrope ou préférentielle. Les propriétés des liaisons ou contacts (nombre de contacts par fibre, surface des contacts, etc.) entre fibres sont plus particulièrement étudiées à l'issue de ce chapitre. La validité des valeurs obtenues des différents descripteurs est jaugée par rapport aux données expérimentales existantes dans la littérature obtenues par des méthodes de mesure le plus souvent indirectes. Des données telles que le nombre de contacts fibre-fibre par fibre sont comparées aux prévisions de différents modèles de microstructures fibreuses papetières.

- Dans le chapitre 8, cette étude est ensuite complétée par une première tentative de quantification des évolutions de ces microstructures lorsqu'elles sont soumises à des variations d'humidité.

- Le chapitre 9 aborde la question de la définition d'un VER microstructural à partir de l'analyse des longueurs de covariance des images tridimensionnelles de papiers modèles. La problématique générale consiste à savoir s'il est possible de déterminer un VER dans toutes les directions pour ce type de réseaux papetiers : c'est-à-dire de définir sa taille puis de rechercher des corrélations entre cette taille et les paramètres des opérations de fabrication.

- Le chapitre 10 présente des calculs numériques de type volumes finis sur des portions d'images tridimensionnelles des papiers produits en vue d'obtenir les coefficients élastiques des papiers modèles. Cette étude aboutit à une discussion sur la définition ou l'existence d'un VER micromécanique pour les papiers dont les dimensions sont liées ou non à des longueurs caractéristiques des microstructures fibreuses (typiquement longueurs des segments de fibres entre contacts, dimensions des contacts entre fibres, longueurs de covariance des microstructures).

- Le chapitre 11 donne un premier exemple de calculs, par approche discrète (homogénéisation des structures discrètes périodiques), de propriétés effectives élastiques de mi-

crostructures fibreuses générées numériquement en prenant en compte les évolutions des propriétés géométriques des contacts entre fibres établies expérimentalement dans les chapitres précédents. Cette approche, très simplifiée, où le papier est vu comme un assemblage plan et périodique de fibres rigides, qui sont liées par des jonctions dont le comportement est élastique, permet de tester, entre autre, l'influence du taux, de l'orientation, de l'élancement des fibres ainsi que la géométrie des liaisons sur la réponse élastique des papiers. Les prévisions des paramètres élastiques du modèle de changement d'échelles sont étonnamment proches des valeurs mesurées expérimentalement sur les différents papiers modèles. Un modèle analytique est ensuite développé pour prédire les propriétés élastiques des papiers. Il s'appuie sur l'approche discrète précédente, dans laquelle les champs cinématiques des fibres sont contraints (hypothèse de champ affine). Ce modèle, qui contient une grande partie des descripteurs microstructuraux pertinents (taux, orientation et géométrie des fibres) permet également de bien appréhender les propriétés élastiques des papiers modèles, malgré sa simplicité.

- Cette approche théorique reste néanmoins trop restrictive pour ouvrir le champ à des perfectionnements ultérieurs permettant une représentation plus fidèle du comportement mécanique extrêmement complexe des fibres et des liaisons du papier. C'est pourquoi le chapitre 12 pose le cadre d'une théorie de modélisation du comportement équivalent de réseaux (semi) périodiques de fibres vues cette fois-ci comme des poutres droites, cylindriques et linéairement élastiques de type Timoshenko qui sont liées entre elles par des liaisons rigides ou élastiques. Ce modèle est établi dans le cadre général de la théorie de l'homogénéisation des structures périodiques discrètes.

Les conclusions de l'ensemble de l'étude sont données dans le chapitre 13.

Plusieurs de ces chapitres sont écrits en anglais étant donné qu'il sont soit issus d'articles publiés ou actuellement soumis, soit font partie de futurs projets d'articles dans des revues périodiques publiées en anglais.

Partie I

Bibliographie

Chapitre 2

Le papier : matériaux de base et fabrication

2.1 Introduction

Le papier peut être défini comme une feuille à microstructure poreuse composée essentiellement de fibres ou d'éléments de fibres en général d'origine végétale, cellulosique, dont la caractéristique essentielle est de pouvoir se lier les unes aux autres par des liaisons de type hydrogène.
La microstructure du papier dépend en premier lieu de l'origine des végétaux, bois ou plantes annuelles, dont sont extraites les fibres. Le défibrage des végétaux est effectué par des procédés chimiques ou mécaniques qui affectent la composition chimique, la morphologie, les propriétés physico-chimiques et mécaniques des fibres. Après extraction, les fibres forment la pâte à papier, c'est-à-dire une suspension contenant quelques grammes d'éléments solides, fibreux, par litre d'eau, qui est utilisée pour fabriquer le papier sur des machines qui, industriellement, fonctionnent en continu. Celles-ci permettent par une succession d'opérations unitaires (voir ci-dessous) d'engendrer la formation de réseaux fibreux plans de grandes dimensions. Ces opérations unitaires sont le second facteur affectant la microstructure du papier et par suite son comportement physique et mécanique. L'origine naturelle des fibres a pour conséquence une importante dispersion des propriétés et une forte sensibilité à l'eau ou l'humidité du papier. À ceci s'ajoute la diversité des paramètres de fabrication si bien que le papier constitue en fait une famille de matériaux poreux et fibreux aux propriétés diverses et extrêmement variées.
Diverses matières non fibreuses peuvent aussi entrer dans la composition du papier. Celles-ci sont soit incorporées dans la masse fibreuse, soit déposées à sa surface pour leur donner des propriétés spécifiques.

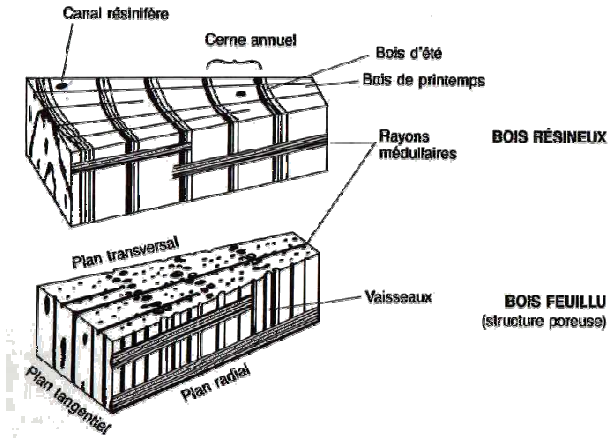


Figure 2.1: Schémas montrant la structure de bois de résineux et de feuillus [11].

Dans les paragraphes suivants, ces différents points sont brièvement passés en revue afin d'en souligner leur importance.

2.2 Le bois et les plantes

Les Chinois auraient fabriqué les premières feuilles de papier dès le 2^{e} siècle à partir d'écorces de mûrier, de filets de pêche usagés et de vieux chiffons de chanvre ou de lin réduits à l'état de pâte papetière par broyage et concassage dans l'eau. Le papier était fabriqué feuille à feuille par tamisage de la pâte pour obtenir un matelas fibreux humide qui une fois pressé puis séché donnait un réseau fibreux plan mécaniquement résistant. De nos jours, le bois qui contient de 40 à 50 % de cellulose fournit la majeure partie, environ 90 %, des fibres (vierges) utilisées. Le reste est issu de plantes annuelles.

Les fibres issues du bois

Les fibres de pâte à papier proviennent du bois (xylème) de feuillus (angiospermes dicotylédones) ou de résineux (gymnospermes). Le bois est un tissu végétal formé par deux systèmes de cellules croisés : un système vertical intervenant dans la conduction ascendante de la sève et le soutien de l'arbre et un système radial formant les rayons ligneux et réalisant les transferts horizontaux et le stockage des réserves (cf. Fig. 2.1).

Les cellules des résineux comportent essentiellement (90 %) des trachéides longitudinales ou radiales. Ce sont des cellules fusiformes, creuses et fermées à leurs extrémités qui ont la double fonction de soutien et de transport de la sève. Elles sont munies pour cela de ponctuations aréolées sur leur longueur pour permettre le passage de la sève d'une cellule à l'autre. Ces éléments conducteurs sont associés à quelques cellules de parenchyme dans les rayons

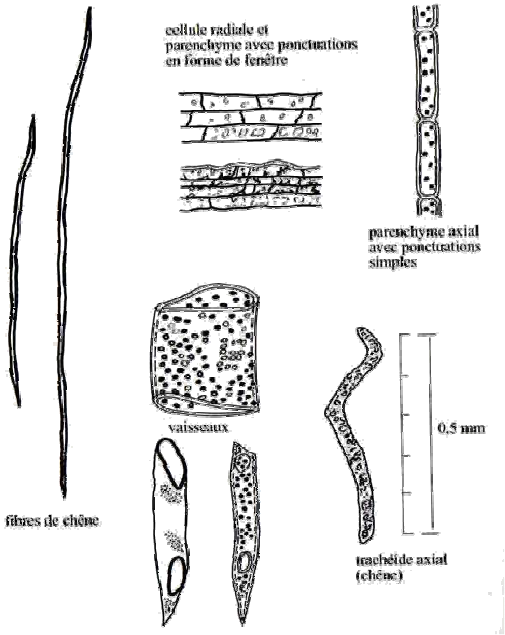


Figure 2.2: Élements fibreux constitutifs du bois de feuillus [6].

ligneux qui assurent la répartition et le stockage des réserves nutritives. À celles-ci s'ajoutent quelques cellules et canaux sécréteurs.
Chez les feuillus, les types de cellules sont plus nombreux (cf. Fig. 2.2) que chez les résineux. Ils comportent notamment en plus des vaisseaux qui sont des cellules aux extrémités perforées assurant la conduction de la sève.
Parmi ces différents éléments, ce sont les trachéides à la géométrie élancée qui sont les cellules recherchées pour alimenter le processus papetier. Ce sont ces éléments qui sont habituellement désignés sous le terme de fibres. Les cellules de parenchyme, les vaisseaux, etc. peuvent perturber les opérations de fabrication et de blanchiment des pâtes à papier, voire même celles ultérieures de fabrication ou d'impression des papiers.
L'empilement par couches concentriques de cellules permet la croissance des résineux et des feuillus, qui se traduit typiquement par l'élargissement du tronc des arbres. Les cellules sont formées sur la face interne d'une zone génératrice, périphérique et peu épaisse de l'arbre : le cambium. Ces couches constituent les cernes du bois (Fig. 2.1). Pour les résineux, dans les régions tempérées, ces cernes sont composés d'une couche de fibres de printemps, à croissance rapide, qui comporte des fibres larges à paroi mince tandis que la couche de fibres d'été (et d'automne), à croissance lente, comporte des fibres moins larges à paroi épaisse. Pour les feuillus, seule la taille des vaisseaux diffère d'une saison à l'autre. En hiver, il n'y a pas de formation de fibres. Les cernes sont d'autant plus étroits que leur croissance est lente, et d'autant plus visibles que l'écart de température entre les saisons est important.

Type	Longueur de la fibre (mm)	Largeur de la fibre (μm)	Rapport longueur sur largeur	Fraction volumique de fibres dans le bois (%)
Feuillus				
Acacia	0,8	60	14	-
Aulne	1,2	28	41	58
Bouleau	1,3	25	52	65
Eucalyptus	1,1	20	53	49
Hêtre	1,2	21	53	37
Tremble	0,9	47	19	61
Résineux				
Sapin baumier	3,5	30-40	100	94
Pin de Paraná	7,2	47	153	95
Epicéa européen	3,5	27	130	95
Pin radiata	2,8	37	76	89
Pin écossais	3,6	39	92	93
Séquoia	7,0	30-65	156	91
Plantes				
Bagasse (canne)	1,7	20	85	-
Bambou	2,7	14	193	-
Roseau	1,2	12	100	-
Blé	1,5	13	115	-
Riz	1,5	8,5	176	-

Table 2.1: Dimensions moyennes de fibres pour des résineux, des feuillus et des plantes [10].

L'ensemble de ces fibres présente des variations morphologiques importantes qui se répercutent sur leurs propriétés physiques et mécaniques.
Les tailles caractéristiques des fibres sont de l'ordre de 1 mm à 10 mm de longueur et de 10 μm à 50 μm de largeur et d'une épaisseur de 1 μm à 8 μm. Le tableau Tab. 2.1 présente des ordres de grandeurs de dimensions de fibres pour des résineux et des feuillus.

Les fibres issues de plantes
Les plantes annuelles (cf. Tab. 2.1) fournissent elles aussi des fibres dont les caractéristiques sont très variées. Ces fibres sont principalement utilisées en complément des fibres de bois en vue d'améliorer des caractéristiques spécifiques au papier. Les fibres issues du chanvre sont par exemple en partie utilisées dans la confection de papier cigarette pour leur faible capacité de combustion.

2.3 Composition des fibres de bois et de papier

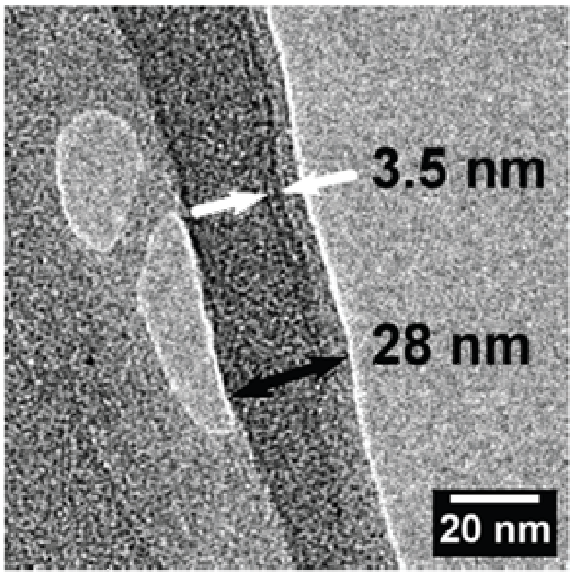
Structure chimique

Les constituants majoritaires des fibres de bois sont la cellulose, les hémicelluloses et les lignines présentes dans des proportions variables dans la paroi des fibres. À ceux-ci s'ajoutent les «extractibles» de natures diverses présents en faible quantité tels les résines, les tanins, les terpènes, les acides gras, les antioxydants, les composés minéraux, etc.

- *La cellulose* est certainement la molécule organique renouvelable la plus abondante sur terre. Elle remplit le rôle de renfort du composite que constitue la paroi des fibres. Elle représente près de 40 % à 50 % de la masse du bois (sec). Son monomère de base est le glucose. Son degré de polymérisation varie avec l'origine botanique des fibres. Il est très élevé dans les fibres de bois étant compris entre 5000 et 10000. Dans les fibres papetières extraites par des procédés chimiques (voir ci-dessous), il reste le plus souvent supérieur à 1200 voire 1500. Les chaînes de cellulose s'agencent sous forme de *fibrilles élémentaires* [1], structures possiblement vrillées [2], comportant des zones cristallines, dont le diamètre varierait de 2.2 nm à 3.6 nm [8, 1] et la longueur serait d'environ 20 nm à 30 nm [8] (cf. Fig. 2.3(a)), et d'autres moins ordonnées, amorphes plus ouvertes aux gaz et aux liquides permettant hydratation et gonflement des fibres. Les fibrilles élémentaires comportent un nombre de chaînes de molécules de cellulose compris entre 12 et 36 [2, 3], qui a été estimé récemment à 24 pour des fibrilles élémentaires d'épicéa [2]. La cristallinité globale des chaînes de cellulose serait comprise entre 40 % et 60 % [2]. Ces éléments ont été qualifiés d'élémentaires car on retrouverait ce type de «briques unitaires» dans l'ensemble des structures biologiques comportant de la cellulose naturelle (fibres de bois, de coton, de jute, de ramie, etc. et même des fibres de cellulose bactérienne).
  À un niveau supérieur, les fibrilles élémentaires s'assemblent sous la forme de mèches que l'on appelle les *microfibrilles de cellulose* (MFC). Le diamètre maximal de ces éléments serait de 35 nm [1] et leur longueur varierait de 2500 nm à 5000 nm. Les microfibrilles composent des structures de dimensions encore plus grandes, d'un diamètre inférieur à 1 μm, appelées macrofibrilles selon la classification proposée par Chinga-Carrasco [1].
  Notons qu'un certain flou existe actuellement dans la littérature concernant les dénominations utilisées pour ces éléments constitutifs des parois des fibres; les biologistes n'utilisant pas les mêmes termes que ceux employés dans le domaine papetier ou celui des matériaux composites. Nous avons ici essayé de suivre la classification qui semble utilisée par les biologistes.

- *Les hémicelluloses* (par exemple xylanes, glucomannanes) sont des polymères tridimensionnels, amorphes et ramifiés de plus bas poids moléculaire que la cellulose (de 50 à

(a)



(b)

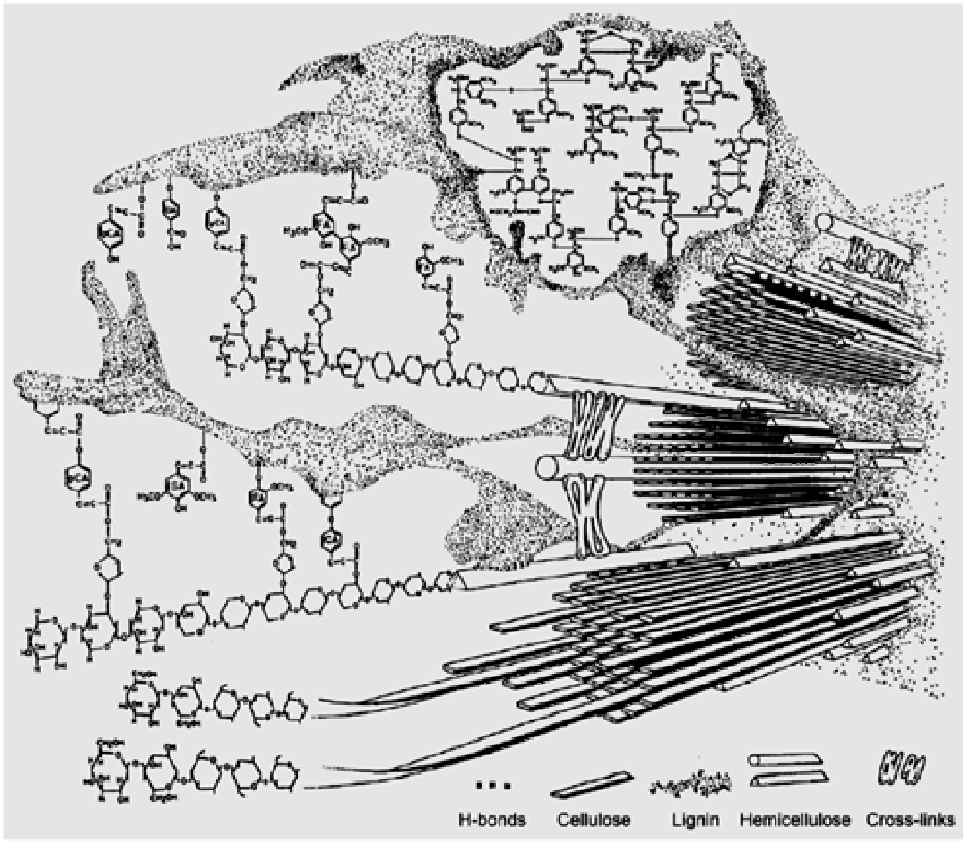


Figure 2.3: (a) Fibrille élémentaire (3.5 nm de largeur) et microfibrille (28 nm) de pin [1]. (b) Représentation schématique de l'agencement des différents constituants chimiques dans les parois des fibres de bois [4].

150). Les hémicelluloses constituent 20 % à 30 % de la paroi cellulaire. Elles complètent les liaisons entre fibrilles élémentaires et agrégats cellulosiques et constituent un intermédiaire avec la lignine des parois des fibres. Les hémicelluloses sont plus facilement dégradables que la cellulose et sont très hydrophiles.

- *Les lignines* sont les deuxièmes polymères naturels les plus abondants sur terre après la cellulose. Le taux de lignine est plus élevé dans les résineux variant de 25 % à 35 % alors qu'il est compris dans les feuillus entre 15 % et 25 %. Les lignines sont hétérogènes, partiellement hydrophobes et amorphes. Dans les parois des fibres de bois, elles jouent le rôle de la matrice. Elles limitent la pénétration de l'eau dans les cellules du bois, le rendant également très compact et ainsi mécaniquement très résistant.

La figure 2.3 donne une représentation schématique de l'arrangement possible de ces différents polymères dans les parois des fibres de bois. On remarque les fibrilles élémentaires de cellulose qui baignent dans une matrice formée de lignine et d'hémicelluloses. Dans les fibres papetières obtenues par voie chimique (voir ci-dessous), la majeure partie de la lignine (80 % à 90 %) ainsi qu'une fraction importante des hémicelluloses sont éliminées.

Structure de la paroi cellulaire

La Fig. 2.4(a) donne une vision globale de la structure d'une fibre de bois et de son agencement avec ses voisines dans le bois. Il est possible de distinguer les différentes strates de la paroi d'une fibre de bois, son lumen (partie creuse au centre de la fibre) et la lamelle moyenne qui est l'espace intercellulaire séparant les fibres de bois.
La paroi primaire se développe en couches très fines au cours de la phase de croissance et de différenciation des fibres. La paroi secondaire est formée lors d'une deuxième phase qui consiste en un grossissement au cours duquel se produit également un dépôt de lignine associée à des hémicelluloses dans la lamelle moyenne.
La paroi primaire P, très fine (0.1 μm), est constituée de microfibrilles de cellulose perpendiculaires à l'axe de la fibre sur sa partie interne. Sur sa partie externe, l'orientation des microfibrilles est presque parallèle à l'axe. Cette paroi contient beaucoup de lignine (> 50 %) et relativement peu de cellulose et d'hémicelluloses (Fig. 2.5). Elle se confond facilement avec la lamelle moyenne.
La paroi secondaire comporte plusieurs strates S1, S2 et S3 composées de microfibrilles d'orientations différentes. La strate S2 est la plus épaisse des trois (1 μm à 8 μm). Elle représente jusqu'à 80 % de l'épaisseur totale de la paroi d'une fibre. Sa teneur en cellulose est très forte (Fig. 2.5). Elle est constituée de différentes sous-couches de microfibrilles (jusqu'à 150 pour un bois d'été) formant une structure hélicoïdale. L'angle d'enroulement de cette hélice, appelé angle microfibrillaire, est schématisé sur la Fig. 2.4(b). Il varie de $\pm 10°$ à $\pm 50°$. Les propriétés mécaniques des fibres dépendent principalement de celles de la strate S2, à travers l'angle microfibrillaire et les propriétés mécaniques de ses constituants chimiques. Quant

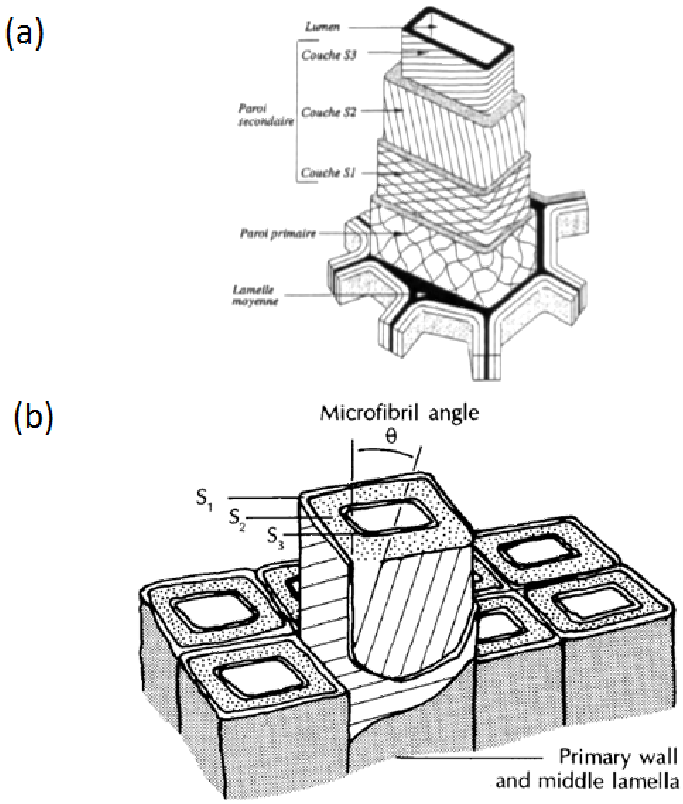


Figure 2.4: (a) Schématisation des différentes couches formant la paroi cellulaire d'une fibre de bois [5]. (b) Représentation de l'angle microfibrillaire θ dans la paroi S2 par rapport à l'axe vertical de la fibre de bois [12].

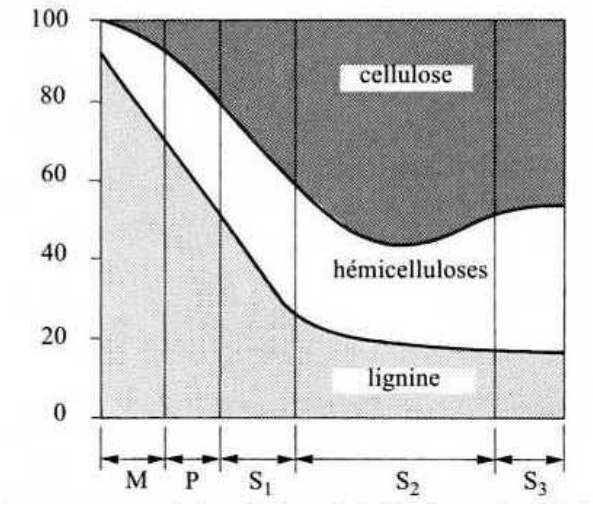


Figure 2.5: Distribution (%) de la quantité de cellulose, de lignine et d'hémicelluloses à l'intérieur de la paroi cellulaire des fibres de bois [7]. M : lamelle moyenne, P : paroi primaire, S1, S2 et S3 : strates de la paroi secondaire.

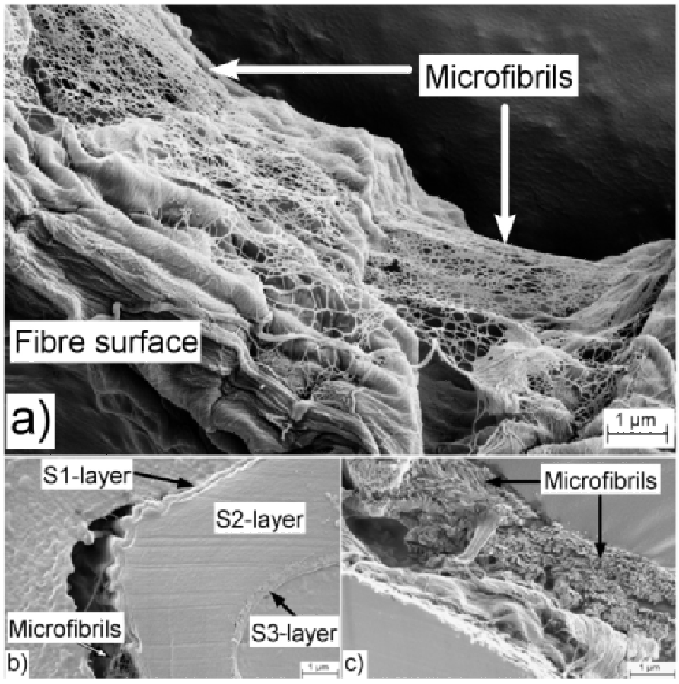


Figure 2.6: Structure de fibres de pâte à papier chimique. (a) Vue d'un réseau de microfibrilles recouvrant la couche extérieure de la paroi de la fibre imagée. (b) Vue en coupe de la section droite d'une fibre et des strates S1, S2 et S3. (c) Faciès de rupture d'une de fibre montrant les microfibrilles composant la strate S2 [1].

aux strates S1 et S3, elles sont assez semblables autant du point de vue de leur épaisseur (0,1 μm à 0,3 μm pour la couche S1, 0,1 μm pour la couche S3) que de leur fort angle microfibrillaire (environ $\pm 80°$). Ces strate sont elles-mêmes composées de couches concentriques composées de faisceaux de microfibrilles.
Selon les procédés d'extraction mis en œuvre pour séparer les fibres lors de la fabrication de la pâte à papier, les parois des fibres de bois vont être plus ou moins bien préservées. Typiquement, la lamelle moyenne va disparaître (en totalité avec les procédés chimiques) et la composition chimique des parois restantes va également évoluer très fortement tout comme la géométrie des fibres. Si dans le bois, les fibres sont plutôt droites, dans les pâtes à papier, les fibres peuvent être plus ou moins incurvées et tordues, présenter des coudes alors que leur surface peut être plus ou moins ridée (Fig. 2.6).

2.4 Procédés de fabrication de la pâte à papier

La fabrication d'une pâte à papier de fibres vierges consiste à séparer les fibres de bois (action de défibrage du bois) en les dégradant le moins possible, ainsi qu'à favoriser l'obtention de propriétés mécaniques, chimiques ou optiques spécifiques en vue de leur utilisation finale

dans le papier. On distingue deux grandes familles de pâtes de fibres vierges qui différent selon leur technique d'obtention : les pâtes mécaniques et les pâtes chimiques (voir Fig. 2.7). Le recyclage des vieux papiers et cartons usagés fournit une troisième source de fibres importantes : les pâtes de fibres recyclées. Celles-ci constituent environ 58% de la matière première fibreuse utilisée actuellement en France [9].

Pâtes mécaniques

Les pâtes mécaniques sont traditionnellement obtenues à partir de rondins ou de copeaux de bois de résineux à fibres longues broyés ou râpés en présence d'eau. Les rondins sont pressés dans de puissants engins mécaniques appelés défibreurs contre d'énormes meules abrasives (pâtes mécaniques de défibreur) tandis que les copeaux de bois sont désintégrés par des appareils à disques équipés de lames tranchantes (pâtes mécaniques de raffineur). Cette pâte est appelée thermomécanique lorsque le défibrage s'effectue à haute température ($> 100°C$) et sous pression. L'eau combinée à la chaleur dégagée par les frottements contribue à ramollir les lignines présentes en grande quantité dans la lamelle moyenne, Fig. 2.4, et ainsi à faciliter la séparation des fibres les unes par rapport aux autres. Cette étape est suivie d'un lavage de la pâte. Ce procédé présente un rendement massique très important, de l'ordre de 90 à 95 %, car quasiment toute la matière est transformée en pâte, y compris les lignines. Les fibres de pâtes mécaniques classiques sont des matériaux qui ne peuvent pas être utilisés seuls pour former des feuilles. Elles doivent être mélangées à des fibres de pâtes chimiques. Leur proportion peut néanmoins être très élevées et atteindre 80 % dans ces mélanges. En ce qui concerne les pâtes thermomécaniques, la cohésion des fibres entre elles dans le papier est meilleure et la proportion de ce type de pâtes dans un mélange peut atteindre jusqu'à 90 %. Dans tous les cas, ces pâtes sont recueillies sous forme de suspension fibreuse très diluée dans l'eau. En général, ces pâtes sont préparées à proximité des machines à papier vers lesquelles elles sont directement acheminées. Ces pâtes comportent des fibres plutôt courtes et partiellement déstructurées. Elles contiennent des agrégats ainsi que des impuretés. Les papiers formés grâce à ces pâtes résistent mal au vieillissement : ils jaunissent et deviennent cassants à cause de la photosensibilité des groupements phénoliques des lignines persistants. Cette pâte aux faibles propriétés mécaniques est principalement utilisée dans la fabrication de journaux, de magazines, d'intérieurs de cartons, c'est-à-dire des papiers dont l'usage est limité dans le temps.

Pâtes chimiques

Les procédés chimiques de défibrage du bois ont pour propriétés de séparer les fibres de bois de feuillus ou de résineux tout en éliminant quasiment totalement leur contenu en lignine. Les pâtes chimiques sont ainsi constituées par la cellulose et par une certaine portion d'hémicelluloses. Deux principaux procédés sont utilisés pour obtenir ces pâtes : le premier procédé, dit au bisulfite, a pour agent actif l'anhydride sulfureux SO_2, le second procédé, dit

procédé au sulfate ou procédé «Kraft», utilise un mélange de soude NaOH et de sulfure de sodium Na_2S (la liqueur blanche). Le procédé kraft est le procédé très majoritairement mis en œuvre de nos jours. Dans les deux cas, la séparation des fibres est obtenue par cuisson en milieu aqueux, à haute température (130°C à 180°C), sous pression et pendant plusieurs heures de copeaux de bois dans un réacteur chimique appelé lessiveur. À l'issue de la cuisson, les éléments indésirables sont dissous dans le milieu aqueux qui devient une liqueur à évacuer. Elle porte le nom de liqueur noire dans le procédé kraft. La pâte apparaît sous une forme d'agrégats solides dispersés par soufflage d'air. Les fibres obtenues sont ensuite lavées et éventuellement blanchies. Si ces pâtes sont produites près d'une machine à papier, elles sont envoyées directement sous forme de suspension aqueuse vers cette installation. Sinon elles sont transformées par un presse-pâte en plaques sèches épaisses de quelques millimètres avant d'être acheminées vers les usines de production de papier.
Le rendement massique de ces procédés n'est compris que entre 40 % et 55%. Mais les pâtes qu'ils fournissent sont d'excellente qualité. Les fibres sont longues et ont de très bonnes propriétés mécaniques. Leur blanchiment est facile et leur degré de blancheur est élevé et stable. Notons qu'il existe des procédés dits mi-chimiques qui combinent des traitements chimiques et mécaniques dont le rendement massique est meilleur (de 55 % à 90%). Les propriétés mécaniques et optiques ainsi que l'aptitude au blanchiment de ces pâtes sont toutefois médiocres.
Globalement, le procédé chimique kraft présente l'avantage de délivrer des pâtes d'excellente qualité et a une très bonne efficacité concernant la consommation d'énergie et le recyclage de produits chimiques. De plus il semble que le rendement de ce procédé puisse encore être amélioré et son impact environnemental diminué [5].

Pâtes recyclées
Les fibres à la base des pâtes recyclées proviennent des résidus issus des circuits industriels (rognures d'imprimerie, emballages), des vieux papiers (journaux invendus) et des emballages usagés. Le procédé consiste à remettre les fibres des vieux papiers en suspension par mouillage et brassage dans un pulpeur puis à éliminer les corps étrangers : agrafes ou matières plastiques éventuellement présentes. Des procédés élaborés de désencrage permettent d'arracher de la surface des fibres les particules d'encres qui se retrouvent en suspension. Leur récupération s'effectue grâce aux bulles des mousses de savon de désencrage qui les fixent. Les bulles et les particules sont récupérées en surface des lits de bulles. Ces pâtes sont principalement destinées à la fabrication des papiers et cartons d'emballage, mais peuvent également entrer dans la composition de papiers impression-écriture.

Blanchiment des pâtes
Les pâtes obtenues sont plus ou moins teintées, ce qui induit une étape de blanchiment pratiquées pour des raisons esthétiques mais aussi afin d'améliorer par exemple les propriétés

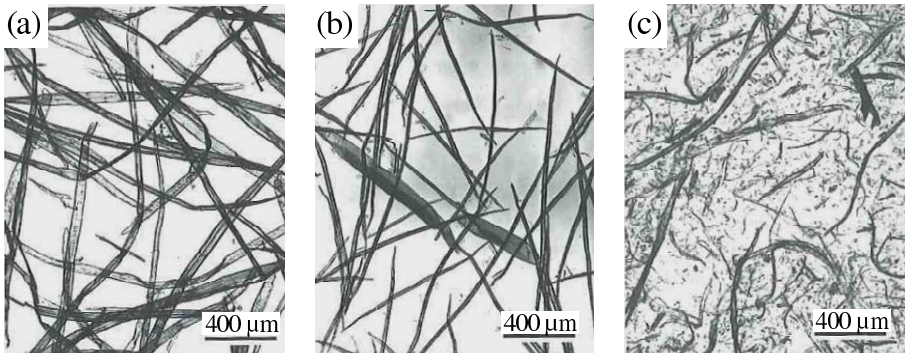


Figure 2.7: Fibres non raffinées de pâte chimique issues (a) d'épicéa et (b) de bouleau. (c) Fibres de pâte thermomécanique issues d'épicéa (noter la présence de particules de tailles éparses) [10].

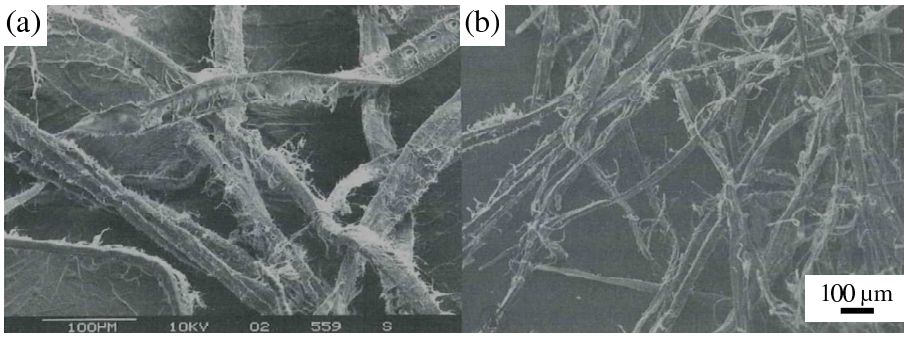


Figure 2.8: (a) Fibres raffinées de pâte chimique. (b) Fibres de pâte mécanique : noter la similarité de l'aspect de la paroi de ces fibres avec celles de pâte chimique ayant été raffinées. Les fibres ont été lyophilisées pour davantage révéler les microfibrilles. Lors d'un séchage classique, les microfibrilles tendent en effet à se recoller à la surface de la fibre [10].

mécaniques des fibres à l'état sec ou humide ainsi que leur capacité à former des liaisons. Les agents de blanchiment sont des oxydants du type chlore et oxygène qui sont fournis *in situ* par divers dérivés. Les pâtes mécaniques peuvent ainsi être simplement traitées au peroxyde d'hydrogène (l'eau oxygénée) qui décolore les lignines. Mais les procédés de blanchiment simples posent des problèmes de stabilité du degré de blancheur, d'où le jaunissement rapide du papier. Un traitement de blanchiment des pâtes donnant des degrés de blancheur élevés et stables comporte plusieurs séquences. Les pâtes chimiques kraft peuvent être soumises par exemple à un traitement au dichlore suivi d'un traitement au dioxyde de chlore puis à l'hypochlorite de sodium. Ces traitements éliminent les lignines résiduelles, rendant la pâte plus résistante mécaniquement et blanche plus longtemps.

Raffinage des pâtes

Cette opération consiste à agir mécaniquement en milieu aqueux sur les fibres de pâtes chimiques. Au cours du traitement, les fibres en suspension passent à travers un entrefer étroit

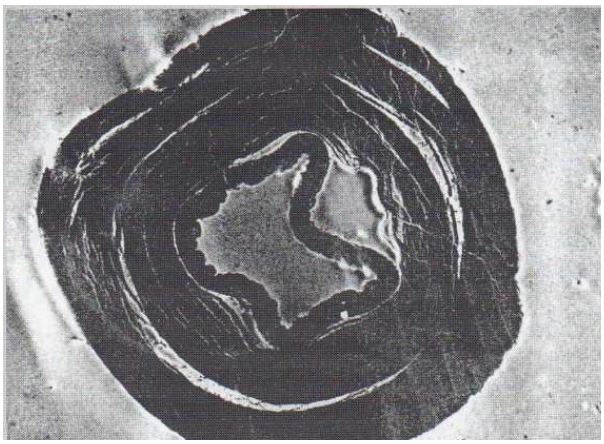


Figure 2.9: Vue en coupe de la section d'une fibre de pâte chimique ayant subi un raffinage important [10].

formé par des disques cannelés en rotation. Ce procédé engendre d'une part un phénomène de fibrillation externe des fibres : des microfibrilles ou des agrégats de microfibrilles se détachent de leur paroi secondaire, ce qui augmente leur surface spécifique. Les photographies de fibres raffinées de la Fig. 2.8 mettent en évidence ce phénomène. Le raffinage crée d'autre part des phénomènes de fibrillation interne des fibres qui correspondent à une délamination de leur paroi comme indiqué sur la Fig. 2.9. Ces modifications augmentent la capacité de gonflement et d'absorption d'eau, la flexibilité et la «conformabilité» (capacité d'une fibre à épouser la forme d'une de ses voisines) des fibres humides. Les procédés d'obtention des pâtes mécaniques induisent des phénomènes assez semblables sur les fibres : voir Fig. 2.8(b). Les modifications des propriétés microstructurales, physiques et mécaniques des fibres engendrées par le raffinage ont pour effet d'améliorer leur enchevêtrement ultérieur. La densité des réseaux fibreux est accrue, le nombre de zones de contact est multiplié et les surfaces des contacts (et de liaisons) sont augmentées. Un effet néfaste d'un raffinage trop poussé est qu'il tend à couper les fibres. Le raffinage produit aussi l'arrachage de bouts de fibres ou de fragments de fibres.

Les fines

Les pâtes contiennent une quantité non négligeable de particules fines. Dans les pâtes chimiques, les fines peuvent représenter jusqu'à 15 % en masse de la pâte alors que cette proportion peut atteindre jusqu'à 50 % dans les pâtes mécaniques. Il s'agit de bouts de fibres ou de fragments de paroi pour les plus longues (200 μm), d'agrégats de microfibrilles et de portions de microfibrilles pour les plus petites (> 1 μm), arrachés lors des opérations de fabrication des pâtes mécaniques ou lors des opérations de raffinage des pâtes chimiques. Les cellules de parenchyme du bois rentrent également dans cette catégorie. Les fines des pâtes chimiques sont en général plus riches en hémicelluloses que les fibres dont elles sont issues : les

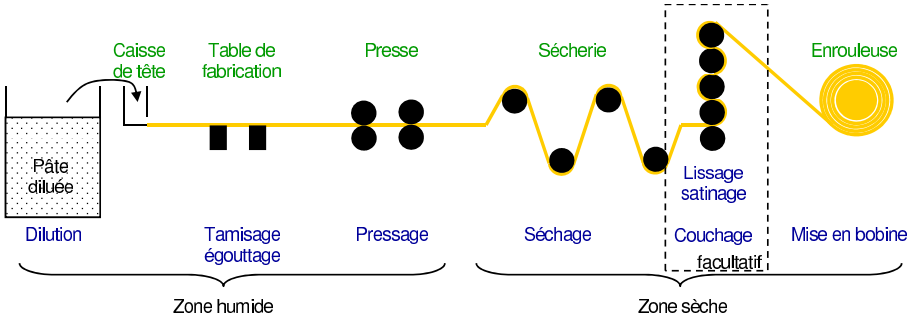


Figure 2.10: Principe de la fabrication industrielle du papier.

zones riches en hémicelluloses sont plus faibles mécaniquement et se détachent facilement de la paroi. Les fibres des pâtes mécaniques sont plutôt riches en lignine car elles proviennent principalement de la lamelle moyenne et de la paroi primaire des fibres de bois.
Les fines sont des particules qui ont une grande surface spécifique. Celles riches en hémicelluloses provenant des pâtes chimiques ont ainsi plus tendance à gonfler que les fines riches en lignine des pâtes mécaniques. Les fines auraient tendance à améliorer la qualité des liaisons entre fibres dans les papiers.

Les pâtes sont choisies en fonction des propriétés recherchées pour la feuille de papier. Par exemple, un papier à base de pâte chimique a une résistance mécanique en traction deux à trois fois supérieure à une feuille formée (majoritairement) de pâte mécanique. En revanche, l'opacité des papiers à base de pâte mécanique est meilleure que l'opacité de ceux à base de pâtes chimiques. Très souvent des mélanges de pâtes sont utilisés pour fabriquer par exemple des papiers impression-écriture ou des cartons plats.

2.5 La fabrication industrielle du papier

La fabrication industrielle du papier consiste à former un matelas fibreux à partir de la pâte à papier en utilisant une machine à papier (MAP) qui permet d'enchaîner en continu différentes opérations unitaires de fabrication parmi lesquelles les opérations de base de formation, pressage et séchage. La machine à papier peut être scindée en deux parties : la zone humide et la zone sèche.
Avant d'être introduit sur la MAP, la pâte obtenue de manière mécanique, chimique ou par recyclage peut subir un raffinage et éventuellement une adjonction de charges minérales ou d'autres adjuvants polymériques. Elle subit ensuite une épuration par décantation ou classage (au moyen par exemple d'hydrocyclones) afin d'éliminer les impuretés indésirables telles que des restes d'écorces, du sable, des agglomérats de fibres ou de charges, des particules de matières plastiques, etc. Pour obtenir une formation de feuille convenable, il est

nécessaire que les suspensions de fibres soient très diluées pour favoriser l'enchevêtrement homogène des fibres. La pâte est diluée à une concentration d'environ 3 %. Une dernière étape avant l'introduction de la pâte sur la MAP est sa «désaération» à l'aide d'appareils permettant de faire le vide. L'air contenu dans la suspension fibreuse est nuisible : les grosses bulles sont à l'origine de mousse (utilisation de produits chimiques antimousses) et les petites bulles favorisent la formation de «flocs» (d'agrégats de fibres).
Le schéma général de fabrication du papier lorsque la pâte est épurée et diluée est présenté sur la Fig. 2.10.

La zone humide
Elle débute par la caisse de tête qui contient la suspension de fibres diluée. Sa face antérieure est percée d'une fente ou munie de buses. La suspension fibreuse est projetée au travers de ces appendices sur la table de formation qui comporte une toile plastique (anciennement métallique) sans fin qui défile en continu et sur laquelle se répartit la suspension fibreuse. L'eau est évacuée de la suspension par égouttage au travers de la toile. Pour forcer cet égouttage, des caisses aspirantes disposées sous cette toile absorbent une partie de l'eau. À l'issue de l'opération de formation, le gâteau de fibres humides contient encore 75 % à 85 % en masse d'eau. À ce stade, le matelas de fibres est déjà pourtant suffisamment résistant mécaniquement pour être dirigé vers les cylindres de la section de presses. Le pressage élimine une grande quantité d'eau : la feuille de papier est consolidée ; le réseau fibreux ainsi formé ne contient plus que 33 % à 45 % d'eau en sortie de presse. La feuille est ensuite séchée pour éliminer l'eau résiduelle du matelas fibreux humide (voir ci-dessous).

La zone sèche
Le papier pénètre dans une sécherie où le papier est plaqué au moyen d'une toile sur de gros cylindres (diamètre de 1 à 1,5 m) chauffés intérieurement (souvent à la vapeur) afin d'éliminer l'eau restante. Cette étape est très importante car elle est à l'origine de la formation (ou plutôt du soudage) de la plupart des liaisons entre les fibres. C'est aussi lors de cette étape que la feuille de papier subit un retrait important induisant des contraintes mécaniques internes dans les fibres et les liaisons. À l'issue du séchage, la feuille ne contient plus que 5 % à 10 % d'eau et présente un état de surface médiocre. Pour diminuer sa rugosité et rendre sa surface plus unie, la feuille de papier est en général passée entre les rouleaux métalliques polis d'une lisse qui est un dispositif mécanique disposé en fin de machine à papier avant la bobineuse. Une seconde méthode d'atténuation de la rugosité consiste à passer la feuille de papier dans une calandre. C'est un dispositif indépendant de la machine à papier comprenant plusieurs dizaines de rouleaux superposés faits de métal poli ou munis d'une feutre entre lesquels la feuille de papier est comprimée et subit une friction. Cette opération confère des propriétés de satinage au papier. Si les passages en lisse ou en calandre ne suffisent pas pour gommer ces irrégularités de surface, des opérations d'enduction (au moyen d'une

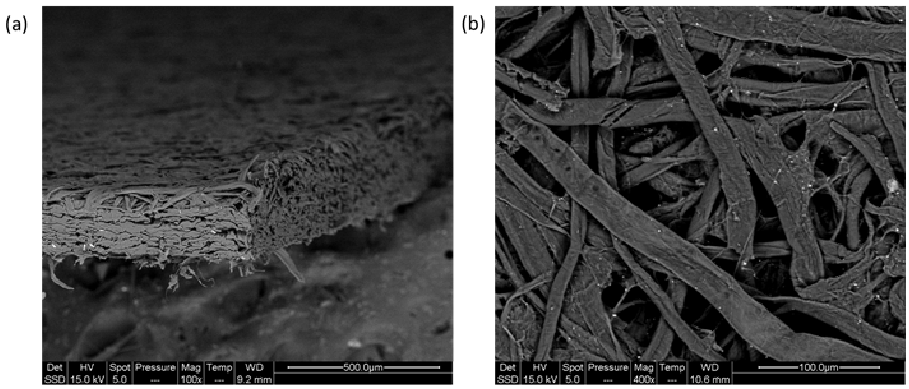


Figure 2.11: Microstructure d'un papier buvard : (a) vue de la tranche, (b) vue de dessus.

presse encolleuse) ou de couchage de surface en ligne sont éventuellement pratiquées pour déposer à la surface de la feuille de papier un mince enduit de particules le plus souvent minérales (kaolin, carbonate de calcium) liées entre elles par un adhésif (latex plus amidon ou caséine par exemple). Cet enduit comble voire recouvre les creux et les bosses à la surface du papier. Les feuilles de papier produites sur MAP sont très larges : leur laize peut varier selon les machines de 2 m environ à plus de 10 m. Les bobines mères qui sortent de la MAP sont ensuite débitées en bobines filles qui sont soit envoyées à l'utilisateur final, soit découpées en formats. La vitesse de production est de l'ordre de 100 m min^{-1} à 200 m min^{-1} sur les machines lentes (pour papiers spéciaux) à plus de 1000 m min^{-1} voire 2000 m min^{-1} pour les machines rapides (papiers journaux).

2.6 Quelques papiers usuels et leur microstructure

Les figures 2.11 à 2.15 montrent la très grande variabilité de propriétés microstructurales de différents papiers d'usage très courant. Ces propriétés sont obtenues à partir d'un choix judicieux des pâtes à papier ainsi qu'en adaptant les paramètres du procédé papetier. Le but est de conférer à ces matériaux des propriétés d'usage (propriétés thermiques, mécaniques, optiques, etc. propriétés de perméabilité, d'absorption, etc.) adéquates pour leur utilisation. Nous n'avons pas souhaité donner une liste exhaustive d'exemples. Les papiers choisis ne représentent qu'un nombre infime des références que l'on trouve actuellement sur le marché et ne couvrent qu'un nombre très limité d'applications.

Buvard

Le papier buvard, voir Fig. 2.11, est en général composé de pâte chimique (au bisulfite) et de pâte mécanique. Il ne présente pas de charges ni de colles, et ne subit pas d'apprêt mécanique. Les fibres qui le composent sont blanchies afin de lui conférer de meilleures pro-

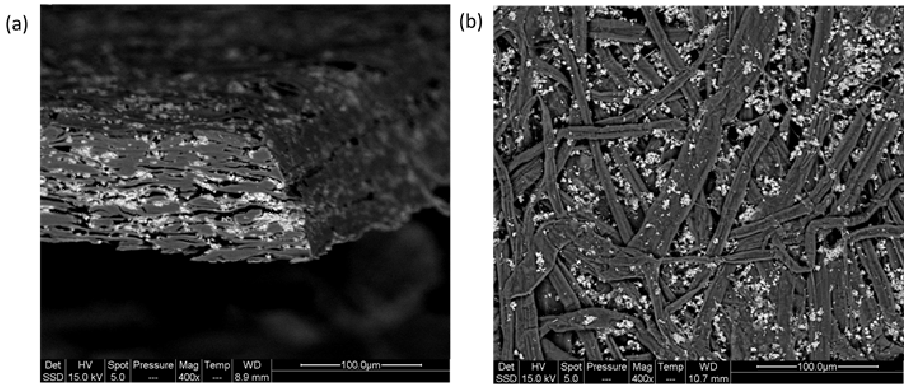


Figure 2.12: Microstructure d'un papier impression-écriture non couché: (a) vue de la tranche, (b) vue de dessus. Noter la «régularité» des fibres et la présence de nombreuses charges minérales apparaissant en blanc réparties dans l'ensemble de la microstructure fibreuse.

priétés d'adsorption. Sa microstructure fibreuse très poreuse et son grammage important, de l'ordre de 80 g m^{-2} à 200 g m^{-2}, favorisent la rétention des liquides par capillarité.

Papier impression-écriture

Les papiers impression-écriture, voir Fig. 2.12, sont majoritairement composés de fibres de résineux et de feuillus (eucalyptus) non endommagées issues de pâtes chimiques. Le réseau fibreux comporte en plus un grand nombre de particules telles que les fines ou des charges minérales (par exemple du carbonate de calcium ou du dioxyde de titane) utilisées principalement pour améliorer son opacité. Les charges minérales servent également de substitut aux fibres bien plus coûteuses. Des revêtements tels que les sauces de couchage à base de latex ou de résines polymériques peuvent également être appliqués à la surface de ces papiers pour améliorer leurs propriétés de surface. Les principales propriétés visées pour ces microstructures sont une bonne planéité, une faible rugosité, une bonne opacité et de bonnes propriétés de stabilité dimensionnelle.

Papier reproduction couché sur une face

Les papiers de reproduction nécessitent une rugosité de leur surface d'impression extrêmement faible, voir Fig. 2.13. Dans ce cas-là, l'adjonction d'une couche de revêtement devient nécessaire. Le rôle du papier devient celui d'un support dont la stabilité dimensionnelle est cruciale pour la qualité d'impression et la conservation des documents.

Papier journal

Le papier journal, voir Fig. 2.14, est composé de différents types de fibres en général de pâtes recyclées ou de pâtes mécaniques. Pour augmenter la résistance mécanique de ces papiers, une proportion de 5 % à 10 % de fibres vierges de pâte chimique de résineux est en

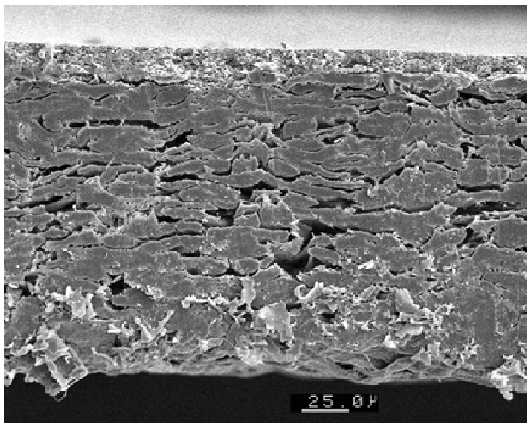


Figure 2.13: Microstructure d'un papier couché sur une face utilisé pour la reproduction de photographies: vue de la tranche. Image Grenoble INP - Pagora et IRFIP, grandissement × 400.

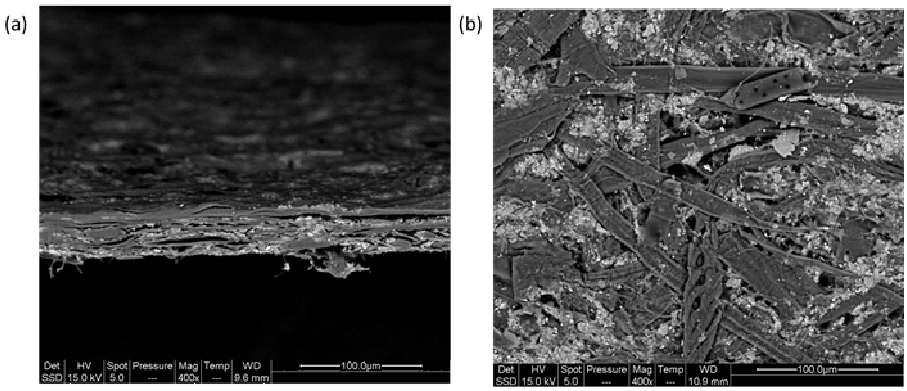


Figure 2.14: Microstructure d'un papier journal: (a) vue de la tranche, (b) vue de dessus. Noter la dispersion de la taille des éléments composant le réseau fibreux ainsi que la quantité de charges minérales très importante.

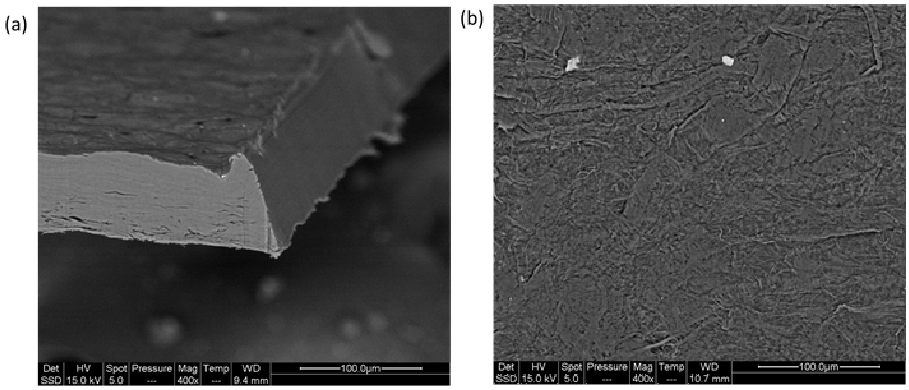


Figure 2.15: Microstructure d'un papier calque: (a) vue de la tranche, (b) vue de dessus. Noter qu'il est possible de reconnaître la trace de la structure de certaines fibres dans ces papiers malgré les traitements mécaniques extrêmement poussés que ces objets ont subi lors de l'opération de raffinage de la pâte.

général incorporée. Les propriétés recherchées par ces papiers sont la résistance mécanique (pour supporter les contraintes de fabrication et d'impression à des cadences très élevées), l'opacité et l'aptitude à l'impression.

Papier calque

Les papiers calques, voir Fig. 2.15, ont une microstructure fibreuse très particulière. Les fibres de pâtes chimiques qui les composent sont tellement raffinées que la paroi de ces objets s'ouvrent ou se désagrègent complètement. Les fibres ou ce qu'il en reste forment des microstructures extrêmement denses au travers desquelles la transmission directe de la lumière devient possible : les papiers calques deviennent translucides. Si l'on pouvait observer dans les matériaux précédents que les fibres formaient des réseaux plus ou moins complexes, dans le cas des papiers calques, cette notion ne paraît clairement plus adaptée.

Bibliographie

[1] G. Chinga-Carrasco, Cellulose fibres, nanofibrils and microfibrils: The morphological sequence of MFC components from a plant physiology and fibre technology point of view, Nanoscale Research Letters, 6:417–424, 2011.

[2] A. N. Fernandes, L. H. Thomas, C. M. Altaner, P. Callow, V. Trevor Forsythd, D. C. Apperleyf, C. J. Kennedy, M. C. Jarvish, Nanostructure of cellulose microfibrils in spruce wood, PNAS, 108(47):E1195–E1203, 2011.

[3] R. E. Mark. Handbook of physical testing of paper, Volume 1, Second Edition, Revised and Expanded, chapter 14. Richard E. Mark, Charles C. Habeger, Jr., Jens Borch and M. Bruce Lyne (eds). Mechanical properties of fibres, pages 727–871. Marcel Dekker, Inc.: New York, 2002.

[4] Á. T. Martínez, F. J. Ruiz-Dueñas, M. J. Martínez, J. C. del Río, A. Gutiérrez, Enzymatic delignification of plant cell wall: from nature to mill, Current Opinion in Biotechnology, 20:348–357, 2009.

[5] M. Margarido, , Thèse de l'Université de Grenoble - Alpes, 2011.

[6] P. Navi, F. Heger, Comportement thermo-hydromécanique du bois, Applications technologiques et dans les structures, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 2005.

[7] A. J. Panshin, C. de Zeeuw, Textbook of wood technology, vol. 1, 3° ed, McGraw-Hill Book Co, New York, 1970.

[8] M. Peura, M. Müller, U. Vainio, M.-P. Sarén, P. Saranpää, R. Serimaa, Trees, 22:49–61, 2008.

[9] D. Reis, B. Vian, C. Bajon, Le monde des fibres, Belin, 2006.

[10] E. Retulainen, K. Niskanen, N. Nilsen, Fibers and bonds, in Papermaking science and technology, Paper physics, Fapet Oy, Book 16, Chapter 2, Finland, 1998.

[11] P. Valette, C. de Choudens, Le bois, la pâte, le papier, CTP, 1989.

[12] J.C.F. Walker, B.G. Butterfield, The importance of microfibril angle for the processing industries, N.Z. Forestry, 34–40, November 1995.

Chapitre 3

Phénoménologie du comportement mécanique et hygroexpansif du papier

3.1 Un comportement mécanique complexe

La réponse mécanique typique d'un papier à un essai de traction est représentée sur le diagramme contrainte-déformation de la Fig. 3.1.
Dans la première partie de la courbe, on observe une linéarité entre la contrainte et la déformation, ce qui correspond à un comportement élastique du matériau, principalement lié au comportement élastique des différents constituants qui composent les fibres et les liaisons du réseau.
Au-delà d'une limite d'élasticité apparente σ_e couramment située entre 2 et 20 MPa, la courbe de traction devient non linéaire et croissante, mettant en évidence un écrouissage du papier. Ainsi, l'essai de décharge/recharge en traction dans cette zone sur la Fig. 3.1 résulte en un accroissement apparent du domaine élastique du papier même s'il existe une faible hystérésis sur la sous-boucle de charge/décharge. Le phénomène d'écrouissage résulte de deux phénomènes au niveau microscopique. Une partie des segments des fibres s'allonge de manière irréversible et l'aire des liaisons diminue lors de l'élongation du papier. À partir d'une déformation suffisamment importante du papier, des segments de fibres alors inactifs dans le domaine élastique, se redressent et transmettent des efforts. Ces phénomènes sont accompagnés par des ré-arrangements au niveau moléculaire dans les fibres et les liaisons. Les irréversibilités plastiques sont induites par les frottements entre fibres.
Enfin l'extrémité de la courbe est le lieu de la rupture de l'éprouvette ($\sigma_r \approx$ 20-100 MPa). Celle-ci est provoquée par une rupture graduelle des liaisons inter fibres dans le cas de papier à faibles grammages (Fig. 3.2(a)), faisant état d'un mécanisme d'endommagement, mais aussi à la rupture des fibres dans le cas de papiers plus denses présentant un nombre de li-

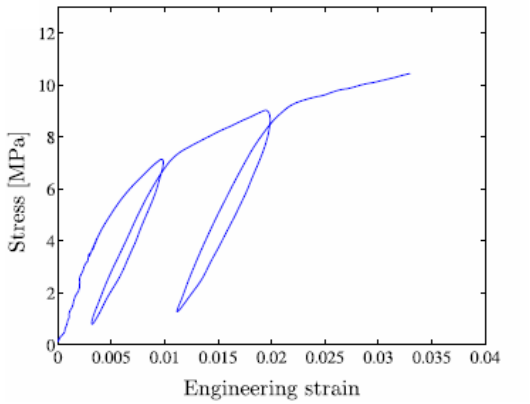


Figure 3.1: Courbe de traction usuelle des papiers [12].

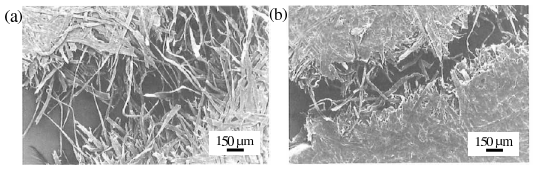


Figure 3.2: Facies de rupture d'un papier (a) de faible grammage et (b) de fort grammage [9].

aisons important et des aires de contacts grandes(Fig. 3.2(b)).
Le comportement mécanique du papier présente aussi une dépendance à la vitesse de déformation (Fig. 3.3) : plus la vitesse de déformation augmente, plus les niveaux de contraintes augmentent.
Couplés aux autres mécanismes, par exemple à l'élastoplasticité des réseaux, ces effets visqueux induisent aussi des comportements à recouvrement retardé. La déformation irréversible après retour à une contrainte nulle lors d'un cycle de charge-décharge est partiellement recouvrée. La majorité du recouvrement retardé dure quelques minutes (Fig. 3.4).
En résumé, les papiers et les cartons présentent un comportement mécanique complexe, communément caractérisé par une réponse élastique linéaire sous des chargements mécaniques modérés, une réponse plastique non-linéaire lorsqu'ils sont soumis à des chargements plus importants, et, quelque soit la gamme de déformation envisagée, une sensibilité à la vitesse de déformation qui, combinée aux mécanismes précédents, complexifie leur comportement.

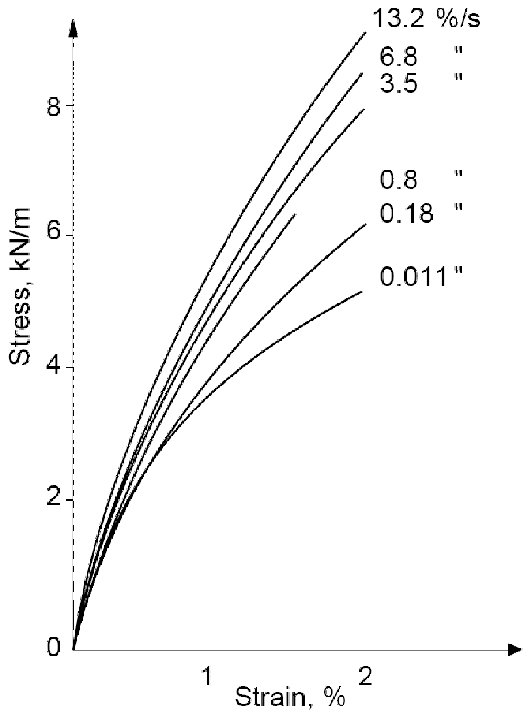


Figure 3.3: Courbe de contrainte-déformation d'un papier glacé pour différents taux de déformation [3].

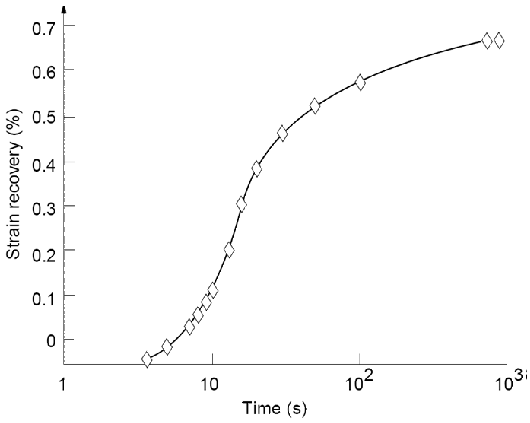


Figure 3.4: Récupération de la déformation au cours du temps lors d'un cycle de charge / décharge sur une formette à base de pâte chimique non raffinée [24].

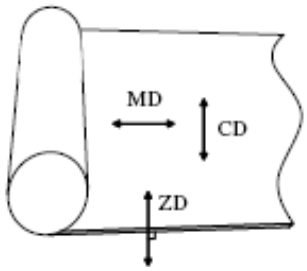


Figure 3.5: Directions principales des papiers fabriqués industriellement [15].

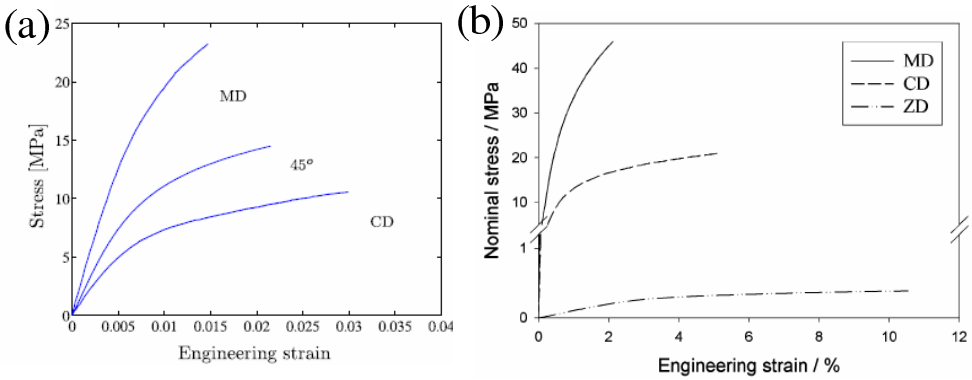


Figure 3.6: (a) Comportement mécanique dans les directions SM, ST et à 45° d'un papier à base de pâte mécanique [12]. (b) Comportement mécanique dans la direction Z comparé aux directions SM et ST [15].

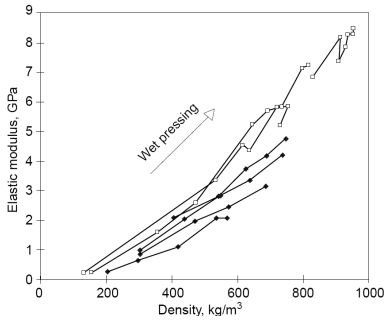


Figure 3.7: Module de Young en fonction de la masse volumique de papiers issus de différentes pâtes chimiques soumis à des pressages croissants [12].

3.2 Influence des conditions d'élaboration sur l'élasticité des papiers

Opération unitaire de formation

La fabrication du papier sur machine industrielle tend à aligner les fibres dans la direction d'avance de la toile de formation. Cette direction est communément appelée Sens Marche (SM) ou Machine Direction (MD). La direction perpendiculaire à celle-ci dans le plan est appelée Sens Travers (ST) ou Cross Direction (CD). La troisième direction hors plan est nommée direction en Z ou ZD pour Z Direction (Fig. 3.5). L'orientation préférentielle des fibres dans les papiers induit des propriétés anisotropes. Ceci est d'autant plus marqué que les fibres elles-même présentent un comportement anisotrope entre les propriétés longitudinales et radiales.

La Fig. 3.6(a) présente un essai classique de traction sur des éprouvettes de papier dans les directions SM, ST et à 45°. L'opération de formation orientant préférentiellement les fibres dans le sens marche, on observe un module de Young plus important et des déformations à la rupture plus faibles dans le sens marche que dans le sens travers. Le comportement dans la direction normale au papier (ZD) est illustré sur la Fig. 3.6(b) qui montre que la contrainte à la rupture est au moins dix fois inférieure à celles relevées dans les directions dans le plan.

Opération unitaire de pressage

Lorsque la pression appliquée pendant l'étape de pressage augmente, les papiers produits présentent des masses volumiques croissantes. La Fig. 3.7 met en évidence la dépendance qu'il existe entre le module de Young et la masse volumique des papiers. Ce comportement n'est pas linéaire, ni affine. Cette figure met aussi en évidence qu'il existe un seuil autour de 150 kg/m^3, sous lequel le papier ne possède plus de caractéristiques mécaniques. En dessous de cette densité, le nombre de liaisons n'est plus suffisant pour assurer la transmission des efforts.

Opération unitaire de séchage

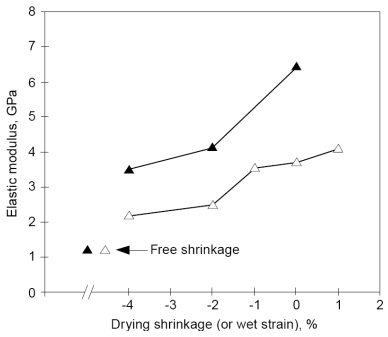


Figure 3.8: Module de Young d'un papier kraft en fonction du type de séchage : libre ou plus ou moins contraint. Les triangles blancs et noirs représentent respectivement des pâtes ayant subi un faible et un fort raffinage [62].

Pendant l'opération de séchage, il est possible de laisser le papier sécher librement ou plus moins sous contrainte. La première technique permet au papier de se contracter librement alors que la deuxième permet de contrôler la contraction du réseau dans le plan. La Fig. 3.8 montre que le module de Young des papiers augmente plus le rétrécissement lors du séchage est limité.
L'anisotropie des propriétés mécaniques des papiers, principalement liée à l'opération de formation des papiers, est renforcée par l'étape de séchage. La direction MD est en tension lors du séchage alors que les bords du papier ne subissent aucune tension dans la direction transverse. Au centre de la laize, des phénomènes d'adhésion aux cylindres de séchage développent des contraintes dans le sens travers. Ainsi, les fibres alignées selon MD présentent un module élastique plus important que dans la direction CD [29].

3.3 Sorption - désorption d'eau et conséquences sur la mécanique des papiers

3.3.1 Hygroscopie du papier

L'air ambiant peut être vu comme un mélange air-eau où l'eau peut se trouver sous forme vapeur, liquide ou solide. Le rapport entre la pression de vapeur d'eau dans l'air et la pression de vapeur d'eau dans l'air à saturation définit l'Humidité Relative (RH). Lorsque ce rapport est inférieur à 1, le mélange est dit sec et lorsqu'il est égal à 1, le mélange est dit humide.
Les fibres papetières peuvent contenir de l'eau sous différentes formes : de l'eau «libre» dans les pores entre les fibres, dans les lumens sous forme liquide et dans des micro-pores des parois des fibres et de l'eau «liée chimiquement» aux groupes hydroxyles et carboxyles de la cellulose et des hémicelluloses. La teneur ou concentration massique globale en eau m du papier est définie comme le rapport entre la masse d'eau adsorbée et la masse sèche du pa-

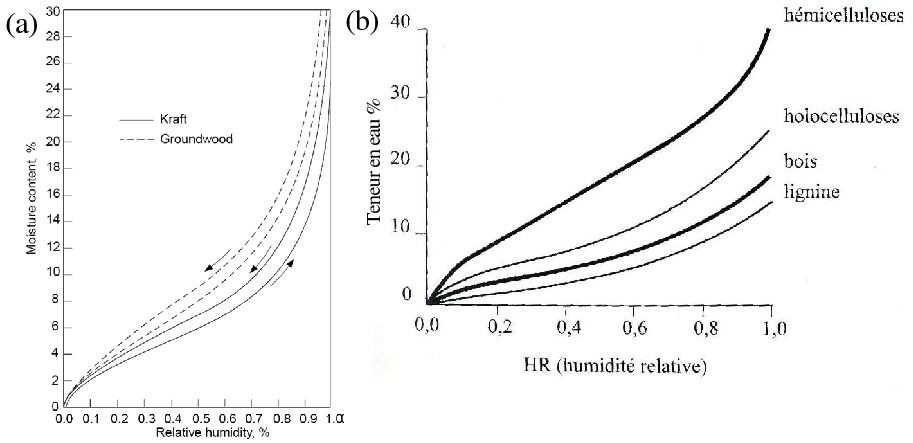


Figure 3.9: (a) Teneur en eau en fonction de l'humidité relative d'une pâte mécanique (groundwood) et d'une pâte chimique (kraft) à T = 50°C. (b) Teneur en eau moyennée sur le cycle complet en fonction de l'humidité relative des principaux constituants des fibres papetières [9].

pier (définie après un passage de l'échantillon 24 h à 105°C). L'état d'équilibre de la teneur en eau du papier en fonction de l'évolution de RH est décrit par des isothermes de sorption (Fig. 3.9(a)). Dans les conditions de saturation à RH = 100 % et T = 23°, l'humidité contenue m du papier est de l'ordre de 25 % - 30 %. Toutefois la teneur en eau dépend de la nature des constituants du papier. L'adsorption d'eau est préférentiellement réalisée dans les zones riches en groupes hydroxyles, telles que les régions amorphes de la cellulose et des hémicelluloses [10, 22, 21]. Ainsi les pâtes mécaniques, plus riches en hémicelluloses, retiennent généralement plus d'eau que les pâtes chimiques (Fig. 3.9(a)). De même les constituants des fibres (hémicelluloses, cellulose et lignine) ne se comportent pas de la même manière : la lignine est relativement hydrophobe alors que les hémicelluloses sont très hydrophiles (Fig. 3.9(b)). L'opération de blanchiment réduisant la quantité d'hémicelluloses, elle tend à réduire la teneur en eau des papiers [17]. L'opération de raffinage ne modifie que légèrement la capacité des papiers à absorber l'eau [6, 17].

La teneur en eau dans le papier pour une humidité relative donnée est différente entre la phase d'adsorption et la phase de désorption, la gamme d'humidité relatives balayée et le nombre de cycles d'humidités réalisés [18, 9, 4, 21, 19]. Cette hystérésis montré sur la Fig. 3.9(a) n'est pas dû à des effets dynamiques ou à un manque de temps pour que la fibre atteigne son état d'équilibre. Ce comportement est lié au caractère énergétiquement plus favorable de l'adsorption par rapport à la désorption.

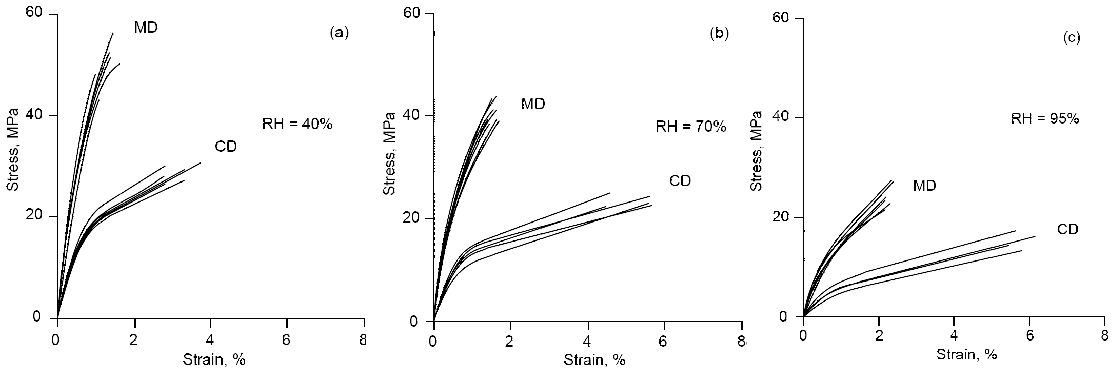


Figure 3.10: Courbes de contrainte - déformation du cartons dans le sens marche et dans le sens travers pour des humidités relatives croissante : (a) RH = 40%, (b) RH = 70% et (c) RH = 95% (les teneurs en eau correspondantes sont 6.6%, 9.7% et 20%).

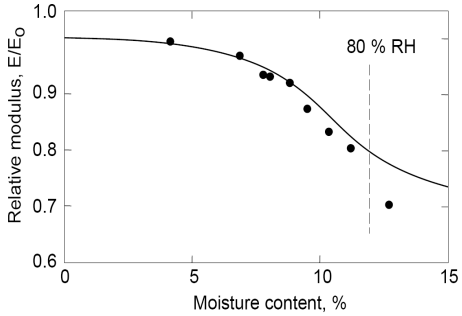


Figure 3.11: Module de Young de papiers en fonction de la teneur en eau. Les modules de Young sont normalisés par leur valeur dans le cas d'un papier sec [28].

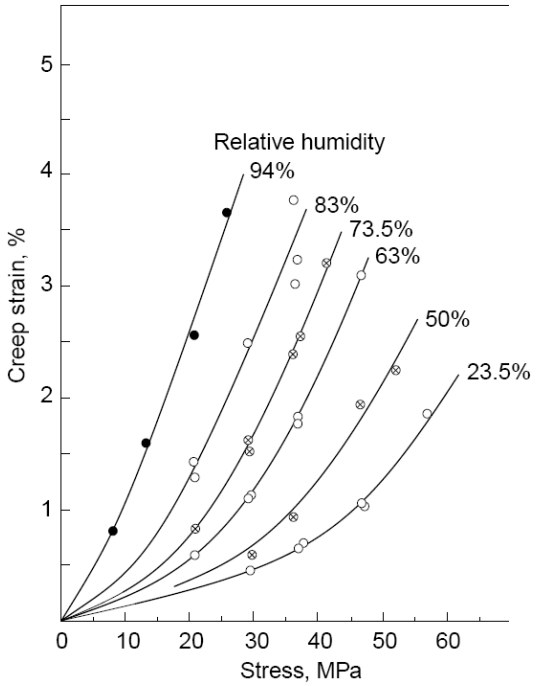


Figure 3.12: Fluage après 24 heures pour différentes humidités relatives maintenues constantes au cours des essais.

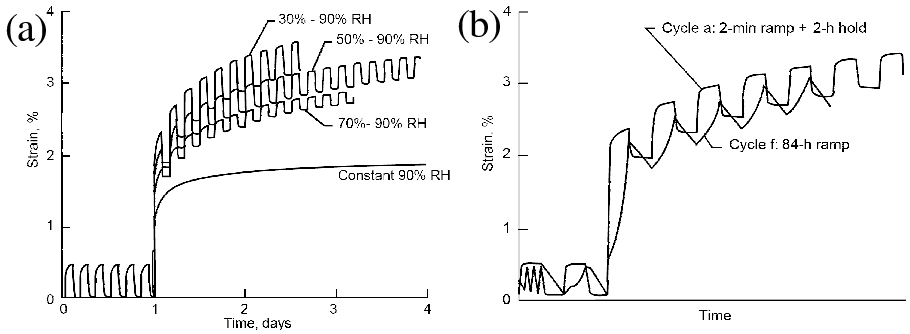


Figure 3.13: (a) Fluage en compression pour des humidités relatives constantes et cycliques. (b) Fluage en fonction du temps pour des variations cycliques (4h et 168h) d'humidité relative entre 30 % et 90 %. Essais effectués sur des formettes à base de pâte d'alpha [8].

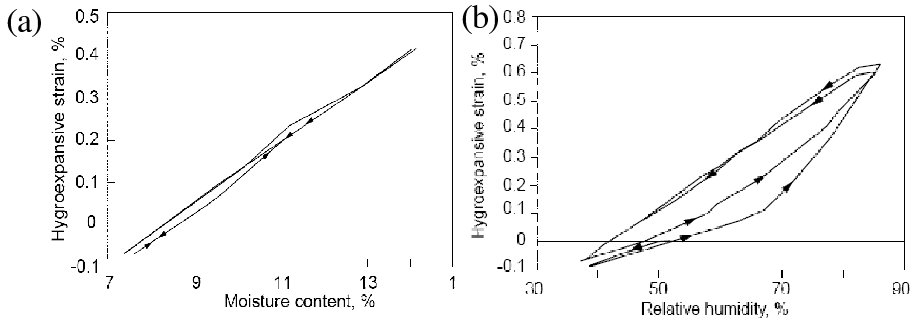


Figure 3.14: Déformation liée à l'hygroexpansion ϵ_h en fonction, (a) de la teneur en eau m, et (b) de HR, dans le cas d'une pâte chimique non raffinée pour un séchage libre [20].

3.3.2 Conséquences sur le comportement mécanique

Le comportement mécanique des papiers est fortement influencé par les changements d'humidités. Une augmentation de la teneur en eau résulte en une dégradation des propriétés mécaniques telles que le module de Young, la contrainte maximale élastique et la contrainte à la rupture, voir la Fig. 3.10. Pour de faibles humidités, le papier est plus cassant et plus fragile. Ces mécanismes prennent leurs origines à l'échelle moléculaire où il se produit un adoucissement des hémicelluloses lors de l'augmentation de l'humidité relative. Les fibres papetières et les liaisons entre ces fibres voient leurs propriétés mécaniques modifiées par leur teneur en eau. Pour des teneurs en eau importantes, entre 8 et 10%, une dégradation accrue des propriétés mécaniques apparait (Fig. 3.11) et est accompagnée de changements irréversibles: par exemple, la contrainte à la rupture d'un papier mesurée à une humidité de 50% à base de sulfite décroit de 2% après un passage à une humidité de 93% par rapport au même papier testé à une humidité de 50% n'ayant pas subi de saut d'humidité [28]. Ces changements irréversibles sont intimement liés aux conditions appliquées pendant l'opération unitaire de séchage ainsi qu'au recouvrement retardé des déformations [27].
L'augmentation de l'humidité ambiante tend à augmenter le fluage du papier comme le montrent les courbes de fluage obtenues après 24 heures pour différentes humidités relatives sur la Fig. 3.12.
Un autre phénomène montrant la complexité du comportement mécanique des papiers est l'évolution du fluage lorsque ceux-ci sont soumis à des changements d'humidités. En faisant des cycles d'humidité, on peut atteindre des taux de fluage bien plus important qu'à n'importe quel taux constant d'humidité relative comme le montrent les Figs. 3.13(a) et 3.13(b). Ce phénomène de fluage accéléré est aussi appelé fluage mécanosorptif.

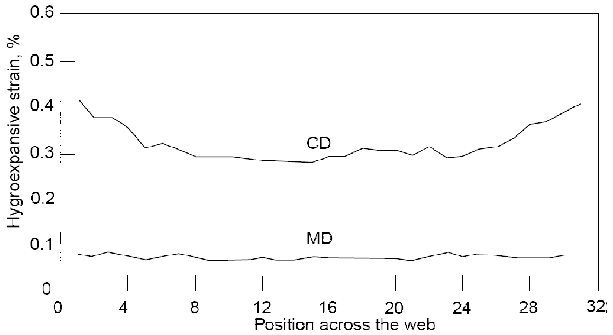


Figure 3.15: Variation dans les directions MD et CD de la déformation liée à l'hygroexpansion ϵ_h selon la largeur d'une laize de papier soumise à des variations d'humidité relative RH de 33 % à 66 % à T = 23°C [6].

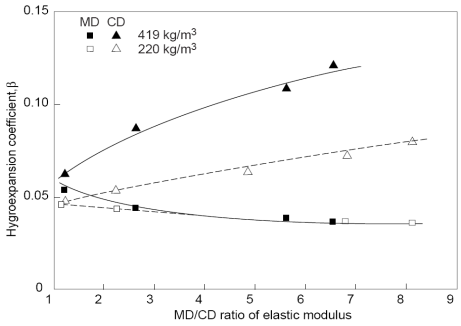


Figure 3.16: Influence de l'anisotropie des propriétés mécaniques sur le coefficient d'hygroexpansion mesurés dans le sens marche et dans le sens travers pour deux masses volumiques différentes (419 et 220 kg/m^2) [20].

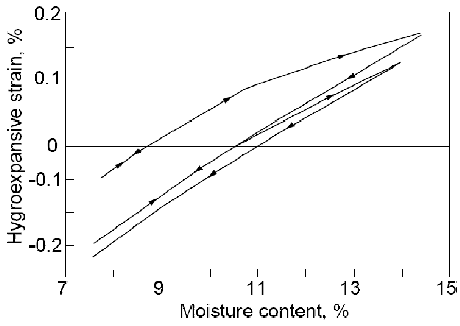


Figure 3.17: Déformation liée à l'hygroexpansion ϵ_h en fonction de la teneur en eau mc dans le cas d'une pâte chimique non raffinée pour un séchage contraint dans le plan [23].

3.3.3 Hygroexpansion

L'hygroexpansion désigne la variation dimensionnelle du papier lorsque sa teneur en eau est modifiée suite à des variations de l'humidité relative de l'air ou de la température. La Fig. 3.14(a) met évidence un comportement quasi linéaire de l'évolution de la déformation hygroexpansive ϵ_h induite par des variations faibles de teneur en eau dans le cas de feuilles séchées librement. La pente de cette droite, définissant le coefficient d'hygroexpansion $\beta = \epsilon_h/\Delta m$, diffère suivant les pâtes utilisées ainsi que les conditions d'élaboration des papiers. La linéarité et la réversibilité de ce phénomène n'est plus vraie quand on étudie l'évolution de ϵ_h en fonction de l'humidité relative HR, comme indiqué sur la Fig. 3.14(b). Ceci est majoritairement lié à l'hystérésis présentée précédemment entre la teneur en eau et l'humidité relative.

Le comportement en hygroexpansion des fibres est anisotrope : pour un saut d'humidité relative de 0% à 100%, les fibres s'allongent de 1% longitudinalement et de 20% latéralement. Il est clair que l'hygroexpansion transverse des fibres contribue majoritairement à l'hygroexpansion observée sur les papiers. Uesaka [4] considère que le coefficient d'hygroexpansion de la feuille est la somme des coefficients d'hygroexpansion longitudinaux des fibres et des coefficients d'hygroexpansion transversaux des fibres pondérés par un facteur qui rend compte du transfert de contraintes du réseau à la direction transverse d'une fibre. Ce facteur contient tous les effets induits par la microstrucure du réseau ainsi que les conditions de séchage. Il est important lorsque les liaisons entre les fibres sont bien marquées, ce qui permet un transfert important de l'hygroexpansion transverse des fibres au réseau. Il est d'autant plus faible que l'aire des liaisons ainsi que les phénomènes d'activation déterminés par les opérations de fabrication sont faibles.

Parmi les conditions d'élaboration des papiers ayant un impact sur l'hygroexpansion, l'opération unitaire de formation de la feuille, qui agit sur l'orientation préférentielle des fibres, donne des coefficients d'hygroexpansion dans le sens travers ($\beta_{CD} \approx 0.1$ - 0.15) 3 à 5 fois supérieur à celui du sens marche β_{MD} (Cf. Fig. 3.15 [6]). La déformation hygroscopique dans la direction travers CD est plus faible au centre de la toile que sur les bords : aux extrémités, le papier subit des phénomènes de retraits importants qui sont induits par des contraintes internes plus faible qu'au centre, ce qui provoque des déformations plus importantes. Dans l'épaisseur du papier, le coefficient d'hygroexpansion est 4 à 10 fois supérieur à celui mesuré dans le plan [10, 20].

De même, par augmentation de la masse volumique, l'opération de pressage tend à accroître le coefficient d'hygroexpansion dans le sens travers et dans l'épaisseur du papier lorsque celui-ci est ensuite séché à retrait libre. À l'inverse, quand le papier est séché à retrait nul, la masse volumique, *i.e.* l'effet de compaction induit par le pressage, a peu ou pas d'effet sur le coefficient d'hygroexpansion [20]. La Fig. 3.16 met en évidence l'influence de l'anisotropie des propriétés mécaniques sur les coefficients d'hygroexpansion mesurés dans le sens marche et dans le sens travers pour deux masses volumiques différentes. On peut constater que les

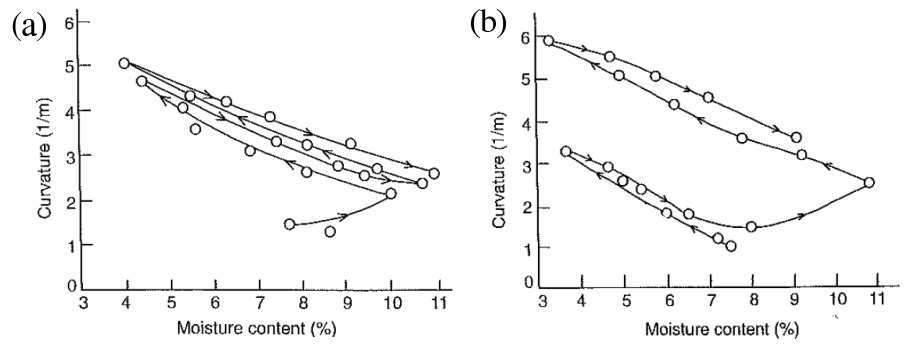


Figure 3.18: Courbures de papiers fins soumis à des cycles d'humidités lorsque le cycle commence (a) par une adsorption et (b) par une desorption [25].

variations de β sont limitées dans le sens marche (allure légèrement décroissante), alors que β croît significativement lorsque l'anisotropie des modules de Young est plus marquée. Ce phénomène est d'autant plus important que la masse volumique des papiers considérés est élevée.

Les conditions de séchage ont un impact prépondérant sur l'hyroexpansion des papiers. Le coefficient d'hygroexpansion dans le plan d'un papier séché à retrait libre est 2 à 4 fois supérieur à celui d'un papier séché à retrait nul [20]. Cette différence est principalement liée à des contraintes internes qui se développent de manière plus importante dans les papiers séchés sous contrainte que librement. Il est à noter que dans le cas de feuilles séchées à retrait nul on observe un phénomène d'hygroexpansion non linéaire, du moins pour les premiers cycles de changements d'humidité (Fig. 3.17). Après quelques cycles, le phénomène redevient réversible et similaire au comportement d'une feuille séchée librement. Dans les premiers cycles, les contraintes internes se relâchent et le papier rétrécit irréversiblement dans le plan. La teneur en eau minimale nécessaire au relâchement des contraintes à 23°C est de l'ordre de 8 % pour des pâtes chimiques et 10 % pour des pâtes mécaniques [23].

3.3.4 Tuilage des papiers

Le tuilage est une déformation hors plan des feuilles de papiers dommageable par exemple dans les procédés d'impressions. Le tuilage induit par des variations d'humidité ou de température a pour origine des variations de structure et de propriétés thermohygromécanqies dans l'épaisseur des papiers. En pratique, ce phénomène est principalement observé lors des étapes de séchage, de couchage et d'impression. Il est par exemple quantifié en mesurant localement les rayons de courbures des échantillons.

Les Figs. 3.18(a) et 3.18(b) présentent des mesures de rayons de courbures de papiers soumis à des cycles d'humidité débutant soit par une adsorption soit par une désorption [25]. Dans

les deux cas, on peut observer l'irréversibilité du phénomène : les rayons de courbure ne reprennent pas leurs valeurs initiales. Après plusieurs cycles, le phénomène tend à devenir réversible sans pour autant se stabiliser pour une teneur en eau donnée. Le tuilage irréversible se manifeste pour des humidités relatives élevées, où il s'opère une relaxation importante de contraintes internes induites par l'opération de séchage.

3.4 Conclusion

Ce chapitre a mis brièvement en lumière la complexité du comportement des papiers étroitement lié au caractère naturel organique des fibres et aux réseaux qu'elles forment dont les propriétés sont intimement liées aux conditions d'élaboration des papiers.

Bibliographie

[1] J. Alfthan P. Gudmundson, S. Östlund, A micro-mechanical model for mechano-sorptive creep in paper, J. Pulp Paper Sci., 28(3), 98–104, 2002

[2] J. Alfthan P. Gudmundson, Linear constitutive model for mechano-sorptive creep in paper, International Journal of Solids and Structures, 42:6261–6376, 2005.

[3] O. Andersson, L. Slöberg, Svensk Pappertid, 56(16):615, 1953.

[4] J. A. Åstrom, K. J. Niskanen, Symmetry-breaking fracture in random fibre networks. Europhysics Letters, 21:447–562, 1983.

[5] R. Benson, Effects of relative humidity and temperature on tensile stress-strain properties of kraft linerboard, Tappi, 54(4), 699–703, 1971

[6] B. Berger, C. Habeger, B. Pankonin, The influence of moisture and temperature on the ultrasonic viscoelasticity properties of cellulose, J. Pulp Pap. Sci., 15(5), J170–J177, 1989.

[7] R. Boulay, B. Drouin, R. Gagnon, Measurement of lod=cal fibre orientation variations, J. Pulp Pap. Sci. 12(6):J177–J181, 1986.

[8] J. P. Brezinski, The creep properties of paper, Tappi 39(2):116, 1956.

[9] C. Fellers, Paper Physics, Pulp and Paper Chemistry and Technology Vol. 4, Paper Products Physics and Technology, de Gruyter, Berlin, 2009.

[10] W. Gallay, Stability of dimensions and form paper, Tappi 56(12), 90–93, 1973.

[11] H. W. Giertz, Contribution to the theory of tensile strength, Proceedings of the EUCEPA/European Tappi conference on beating, Venice, Italy, 33–47, 1964.

[12] A. Harrysson, M. Ristinmaa, Large strain elasto-plastic model of paper and corrugated board, International Journal of Solids and Structures, 45, 3334-–3352, 2008.

[13] C. A. Jentzen, The effects of stress applied during drying on some of the properties of indiviual fibres, Tappi 47(7), 412–418, 1964.

[14] I. Kajanto, K. Niskanen, Dimensional stability, in Papermaking science and technology, Paper physics, Fapet Oy, Book 16, Chapter 7, Finland, 1998.

[15] P. Mäkelä, S. Östlund, Orthotropic elastic–plastic material model for paper materials, International Journal of Solids and Structures, 40, 5599–5620, 2003.

[16] D. H. Page, K. Schulgasser, Evidence for a laminate model for paper, Mechanicq of Cellolosic and Polymeric Materials, R. W. Perkins ed., New York, 35–39, 1989.

[17] M. E. Parker, J. E. Bronlund, A. J. Mawson, Moisture sorption isotherms for paper and paperboard in food chain conditions, Packag. Technol. Sci., 19, 193–209, 2006.

[18] J. Prahl, Thermodynamics of paper fiber and water mixtures, PhD thesis, Harvard Univ. Cambridge, 1968.

[19] B. Ramarao, S. Chatterjee, The fundamentals of papermaking materials Vol. 2, CF Bakker, chapter Moisture sorption by paper materials under varying humidity conditions, 703–749, 1997.

[20] L. Salmén, C. Fellers, The nature of volume hydroexpansivity of paper, J. Pulp Paper Sci., 15(2), 63–65, 1989.

[21] L. Salmén, Products of papermaking Vol. 1,CF. Bakker, chapter Responses of paper properties to changes in moisture content and temperature, 369–430, 1993.

[22] A. Scallan, The structure of the cell wall of wood - a consequence of anisotropic intermicrofibrillar bonding, Wood sci. 6(3), 266–271, 1874.

[23] V. C. Setterholm, W. A. Chilson, Tappi 48(11):634, 1965.

[24] J. Skowronski, A. A. Robertsen, The deformation properties of paper: tensile strain and recovery, J. Pulp Paper Sci. 12(1), J20–J25, 1986.

[25] T. Uesaka, T. Ishizawa, T. Kodaka, S. Okushima, Curl in paper, 3. Numerical simulation of history-dependent curl, Tappi, 43(7), 689–696, 1989.

[26] T. Uesaka, C. Moss, Y. Nanri, The characterization of hygroexpansivity of paper, J. Pulp Paper Sci., 18(1), 11–16, 1992.

[27] J. F. Waterhouse, Residual stresses in paper and board, chap. 10, in Handbook of physical testing of paper Vol. 1, Marcel Dekker, 2002.

[28] W. A. Wink, The effect of relative humidity and temperature on paper properties, Tappi, 44(6), 171A–180A, 1961.

[29] F. Wuu, R. E. Mark, R. W Perkins, Mechanical properties of “cut-out” fibers in recycling. Tappi International Paper Physics Conference Proceedings, Vol. 2, Atlanta, GA (Tappi Press), 663–680, 1991.

Chapitre 4

Microstructure et micromécanique des papiers

Dans ce chapitre, nous présentons brièvement les paramètres microstructuraux et micromécaniques clés, qui conditionnent en grande partie les propriétés hygromécaniques macroscopiques des papiers. On donne également les moyens et outils utilisés pour caractériser ces grandeurs microscopiques dont la plupart sont susceptibles d'être utilisées comme données d'entrée des modélisations micromécaniques dédiées aux papiers. Un bref aperçu de ces dernières est esquissé en fin de chapitre qui dépeint l'état de l'art actuel et justifie les motivations de ce travail.

4.1 La microstructure du papier : descripteurs usuels et moyens d'études

La description des microstructures constituées de fibres enchevêtrées est fondamentale pour cerner l'impact des propriétés de ses éléments sur les propriétés macroscopiques des papiers. Pour cela, deux échelles d'observation des microstructures sont couramment considérées : l'une dite mésoscopique consistant à caractériser des propriétés relatives au réseau dans son ensemble (dans un volume élémentaire, de préférence représentatif), l'autre plus fine, dite microscopique consistant en la description des fibres ainsi que des liaisons entre les fibres.
Depuis les années 1950, un nombre important de travaux a été consacré à l'étude des relations entre les propriétés des fibres et les propriétés des papiers [10, 5, 40, 16, 60, 61]. Les résultats de ce type d'approche s'avèrent toutefois limités et difficile à obtenir, car très souvent, les analyses microstructurales ne sont pas aisées.
Ainsi, on recense les paramètres microstructuraux aux propriétés mécaniques et d'hygro-

expansion des papiers ainsi que les outils associés pour les caractériser.

4.1.1 Paramètres microstructuraux et caractérisation

Fibres

Les propriétés structurales des fibres issues de la pâte à papier pouvant avoir un impact sur les propriétés physiques et mécaniques sont larges : morphologie, composition chimique, ultrastructure des parois cellulaires, proportion de fines ou encore le degré de fibrillation externe. Parmi elles, les caractéristiques de la ligne moyenne de la fibre, à savoir sa longueur, sa courbure et sa torsion ainsi que les caractéristiques des sections droites des fibres (largeur, hauteur, épaisseur de la paroi et forme du lumen) font partie des paramètres majeurs, en particulier pour la prévision des propriétés mécaniques [5, 44].

Deux familles de moyens de caractérisation peuvent être distingués selon l'état dans lequel sont examinées les fibres : les outils de description des fibres à l'état humide et les outils de description des fibres à l'état sec. Dans le cas de fibres mouillées, il est possible de connaître les longueurs des fibres de la pâte et leurs proportions en utilisant l'appareil Bauer Mac Nett. Celui-ci trie les fibres en fonction de leurs tailles par un système de tamisage [9]. Cette étude peut aussi être menée de manière plus précise avec l'appareil MOrFI (Techpap, Grenoble, France) et sur davantage de propriétés morphologiques des fibres. Il réalise automatiquement l'analyse d'images numériques d'un écoulement d'une suspension fibreuse et donne les fonctions de distributions des longueurs, des largeurs, des coudes, des microfibrilles, de fines, etc. Un inconvénient du procédé MOrFI est qu'il traite des images de fibres projetées ce qui tend à minimiser les largeurs mesurées. Pour obtenir une distribution des largeurs de fibres plus juste, il est possible de recourir à des techniques de microscopie optique. Pour cela, des populations de fibres sont piégées entre deux lames de verre, ce qui permet de contraindre les largeurs des fibres à se positionner dans le plan normal à l'oculaire. Il est à noter que les fibres étant mouillées, les distributions de largeurs et, dans une moindre mesure, les distributions de longueurs sont surestimées par rapport aux fibres sèches, à cause du phénomène d'hygroexpansion des fibres naturelles. De même, la courbure des fibres est sous estimée car leur immersion provoque un adoucissement de leurs propriétés mécaniques. Les méthodes de caractérisation des fibres lorsqu'elles sont sèches donnent des informations plus proches de leurs conditions d'usage. Les méthodes utilisées sont basées sur de l'analyse d'images, effectuée sur des clichés de fibres sèches acquis par microscopie optique ou sur de réseaux issus d'observations MEB. La limitation majeure de ces techniques est le caractère à deux dimensions de ces mesures qui tend à sous-estimer les grandeurs mesurées à cause des projections. La caractérisation plus juste de la morphologie des fibres passent ainsi par des mesures sur des images en trois dimensions.

Enfin, une faiblesse des descriptions actuelles est de ne pas considérer des populations suffisamment importantes permettant de construire des distributions de propriétés représen-

tatives. Les techniques actuelles visent à automatiser l'analyse d'images pour obtenir des populations plus importantes afin de donner des histogrammes de distribution de tailles ou encore classer les différentes sections à partir de la détermination de leur facteur de forme [46].

Liaisons entre fibres

La transmission des efforts entre les fibres s'effectue par l'intermédiaire des liaisons. La forme et l'aire des liaisons constituent des données essentielles.

Pour accéder à ces informations, plusieurs moyens basés sur l'étude de liaisons individuelles sont utilisés : Kappel et al. [19, 20, 21] utilisent la microscopie à lumière polarisée, Wiltsche et al. [49] ont recours à une technique de découpage microtome des sections, Thomson et al. [42, 43, 44] utilisent la microscopie par fluorescence. Toutefois, les principaux inconvénients de ces méthodes sont la perte de l'influence des opérations unitaires de fabrication sur la morphologie des liaisons et le faible nombre de liaisons considérées.

L'accès aux caractéristiques des liaisons dans le réseau étant peu aisé, une mesure indirecte et globale de l'aire des liaisons (Relative Bonded Area : RBA) à été développée par Kallmes et al. [26, 28]. Elle est définie comme le rapport entre l'aire liée $A_T - A$ (A : aire de l'interface air-fibres du réseau) sur la surface totale offerte par le réseau «sans liaison» A_T:

$$RBA = \frac{A_T - A}{A_T}, \tag{4.1}$$

Le moyen classique d'estimer la RBA est la technique optique développée par Ingmanson et Thode [23] basée sur la mesure du coefficient de diffusion optique S_c. Cette méthode repose sur l'hypothèse de proportionnalité entre S_c et la surface totale $A_s \approx A$ disponible pour la diffusion de la lumière. En déterminant S_{c0}, le coefficient de diffusion pour une feuille sans aucune liaison d'aire $A_{s0} \approx A_T$, il est possible d'obtenir une estimation de la RBA :

$$RBA \approx \frac{A_{s0} - A_s}{A_{s0}} = \frac{S_{c0} - S_c}{S_{c0}}. \tag{4.2}$$

S_c est obtenus par la mesure des facteurs de réflectance R_0 et R_∞ comme spécifié dans la théorie de Kubelka et Munk [41] :

$$S_c = \frac{R_\infty}{G(1 - R_\infty^2)} \ln\left(\frac{1 - R_0 R_\infty}{R_\infty - R_0} R_\infty\right). \tag{4.3}$$

L'inconvénient majeur de ce descripteur est qu'il ne donne qu'une valeur d'aire moyenne et ne permet pas de rendre compte des distributions des aires de liaisons.

Réseaux fibreux

- Un premier dispositif plutôt qualitatif de caractérisation des réseaux de fibres enchevêtrées est la microscopie optique ou électronique à balayage (MEB). La visualisation directe de la surface des réseaux à une échelle de l'ordre du mm permet d'appréhender l'orientation préférentielle ou non des fibres.

- Pour déterminer la masse volumique et la porosité des papiers de manière quantitative, une méthode indirecte basée sur la mesure des propriétés structurelles des papiers (épaisseur, surface et poids) peut être utilisée.

- L'étude de l'orientation des fibres dans la structure est majoritairement menée à la surface du papier. Une méthode consiste à scanner la surface des papiers présentant une faible proportion de fibres colorées ($\approx 0.5\%$) faisant office de marqueurs [24]. En mesurant les coordonnées des extrémités d'environ 1000 fibres, il est possible de calculer les angles θ_i entre les vecteurs directeurs de ces segments et une direction donnée et ainsi d'obtenir des fonctions de distribution des angles de fibres colorées.
  La méthode des intercepts utilisée sous différentes formes par Corte et Kallmes [11], Forgacs and Strelis [15] et Silvy [24] est basée sur le décompte du nombre d'intersections entre les fibres colorées et des lignes de référence dont l'orientation est modifiée à chaque itération. Ces données indirectes sont ensuite traitées mathématiquement afin de les convertir en fonctions de distribution de l'orientation des fibres dans le réseau.
  Enfin d'autres mesures d'orientation indirectes sont aussi effectuées par des méthodes optiques : ondes électromagnétiques [3, 17], diffraction de la lumière [7, 76], diffraction aux rayons X [57, 54], par des méthodes acoustiques [6, 18] : propagation ultrasoniques ou encore basées sur des tests mécaniques avec l'essai de traction à mors jointifs [31, 63].

- La caractérisation des réseaux consiste également à déterminer le nombre de contacts entre fibres dans un volume donné [9, 30].
  D'autres paramètres apportent une description plus précise des réseaux telle que la position relative de la fibre dans le réseau : inclinaison de la section par rapport au plan des papiers et écarts angulaires de la ligne moyenne par rapport aux axes principaux de l'échantillon de papier, ou encore les distance entre contacts d'une même fibre afin de quantifier les segments libres des fibres [8, 27, 29].

- Une fois que des clichés de microstrucures sont obtenus pour quantifier les hétérogénéités microstructurales, il est pertinent d'utiliser la notion de covariance [45, 6]. La définition de la covariance des domaines X est la probabilité pour les points x et $x+l$ d'appartenir au domaine X. Cette propriété permet de quantifier l'homogénéité d'un réseau pour une taille de domaine X donné. Ainsi, il permet de quantifier la variations de porosité et d'anisotropie de la microstructure dans toutes ses directions.

- Le degré le plus précis de caractérisation des réseaux consiste à obtenir une individualisation des fibres et des liaisons les composant. Cette voie est actuellement encore peu exploitée, principalement par un manque d'outils le permettant. L'essor de la microtomographie appliquée aux matériaux fibreux, associée à des techniques d'analyse d'images, permettent aujourd'hui d'explorer cette approche.

4.1.2 Microtomographie à rayons X

La microtomographie à rayons X est une technique non destructive qui permet la reconstruction de la structure interne tridimensionnelle d'un objet. Elle permet donc d'accéder au cœur de la matière en appréciant les variations d'absorption radiologiques et les différences de composition. La microtomographie à rayons X est mise en œuvre grâce à un dispositif comprenant une source de rayons X synchrotron qui produit l'énergie excitatrice, un système mécanique de positionnement de l'échantillon et un détecteur de rayonnement transmis. Les images brutes obtenues après reconstruction sont codées en niveaux de gris. Un travail de segmentation de ces images permet de distinguer la phase poreuse par des voxels (pixels en 3 dimensions) noirs et la phase fibreuse par des voxels blancs [56].
Cet outil permet de mesurer des propriétés sur un réseau en trois dimensions, évitant ainsi les erreurs de projections sur les descripteurs mis en évidence dans la partie précédente. L'avantage de cette technique est que le volume segmenté peut servir pour différentes études de caractérisations, ce qui d'une part facilite l'analyse des liens entre les différents descripteurs, et d'autre part, raccourcit les temps de caractérisations une fois l'image segmentée. De plus, ce procédé permet d'accéder aux descripteurs plus précis capable de rendre compte des gradients de propriétés dans le matériaux : profils de porosité, profils de surface spécifique, profil d'orientation et mesure des hétérogénéités par les longueurs de covariances.
La microtomographie apporte une solution face aux limites actuelles de la description des microstructures qui résident dans la difficulté à obtenir les descripteurs des fibres et les liaisons dans le réseaux. En effet, les distributions de propriétés varient selon qu'elles sont mesurées sur des fibres isolées ou sur des fibres dans le réseau. Or, afin de quantifier les effets des opérations de fabrication, il est nécessaire caractériser les propriétés des fibres et des liaisons à l'intérieur des réseaux qu'elles forment. L'étude des images issues de tests de microtomographie permettent ainsi d'accéder à des descripteurs permettant de connaître la position relative de la fibre dans le réseau (inclinaison de la section, écarts angulaires de la ligne moyenne par rapport aux axes principaux, distance entre contacts) ainsi que celle des liaisons (nombre de liaisons par fibre, nombre de contacts dans un volume donné). Enfin, l'analyse d'image sur des réseaux microtomographiés permet une individualisation des propriétés des fibres et des liaisons dans les réseaux, permettant de mieux appréhender les mécanismes locaux. Ces données permettent enfin de construire des fonctions de distributions des propriétés utiles pour modéliser le comportement de ces matériaux.

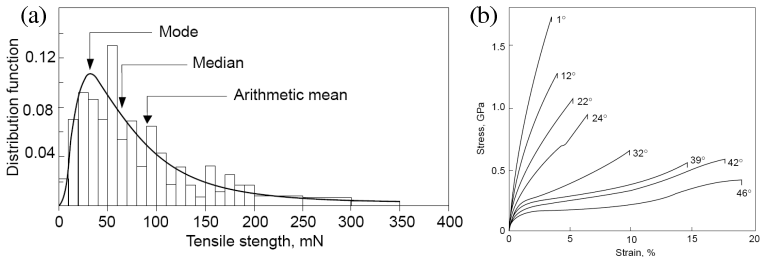


Figure 4.1: (a) Distribution des efforts de traction d'une population de fibres issues d'une pâte blanchie de pruche.(b) Courbes de contrainte-déformation de fibres issues d'épicéa noir présentant des angles microfibrillaires différents. Les essais de traction sont réalisés avec une distance entre mors de 1,2 mm.

4.2 Mécanique des fibres et des liaisons

4.2.1 Comportement des fibres sèches

Cas de fibres isolées

Les propriétés mécaniques des fibres sont généralement difficiles à établir à cause de la haute variabilité qui existe entre elles. Celle-ci est attribuée d'une part à l'origine biologique des fibres et d'autre part aux procédés d'obtention des pâtes. La Fig. 4.1(a) met en évidence la grande dispersion sur une distribution d'efforts de rupture en traction d'une population de fibres. Le comportement de la fibre en traction est proche de celui de la feuille de papier lorsque l'angle de fibrillation est faible. Toutefois, on remarque sur la Fig. 4.1(a) que le module élastique et la limite de rupture décroissent fortement avec l'augmentation de l'angle microfibrillaire, et inversement pour l'allongement à la rupture. La géométrie hélicoïdale de la paroi S_2 explique ce phénomène. Ce comportement n'existe pas ou très peu dans une feuille de papier à cause du réseau formé par les liaisons. Sur ce même graphique, on remarque la non linéarité des courbes, vraisemblablement due à des défauts micro structurels de la paroi de la fibre : zones de micro compression, d'ondulations qui sont «rectifiés» lors de la traction, conduisant ces artefacts. D'autres défections telles que des dislocations ou des inhomogénéités sont liées aux procédés d'obtention des pâtes : défibrage, pulpeur, raffinage, etc. Elles ont pour effet la diminution du module élastique de la fibre. Par exemple, lors de l'étape de blanchiment, les agents chimiques dégradent la cellulose (diminution du degré de polymérisation) et réduisent ainsi la raideur et la résistance de la fibre. Les efforts classiques de rupture se situent entre 100 et 200 mN et les contraintes de ruptures aux alentours de 400 à 600 MPa.

Les fibres présentent une particularité lorsqu'elles sont séchées sous une contrainte de traction : plus elles sont chargées, plus leur propriétés mécaniques (module et contrainte à la rupture) s'accroissent et leurs déformation à la rupture décroissent (Fig. 4.2(a)). La Fig. 4.2(b)montre le phénomène opposé qui apparaît en compression. Une explication de ce phénomène appelé Jentzen serait, d'une part que le chargement de la fibre diminue l'angle

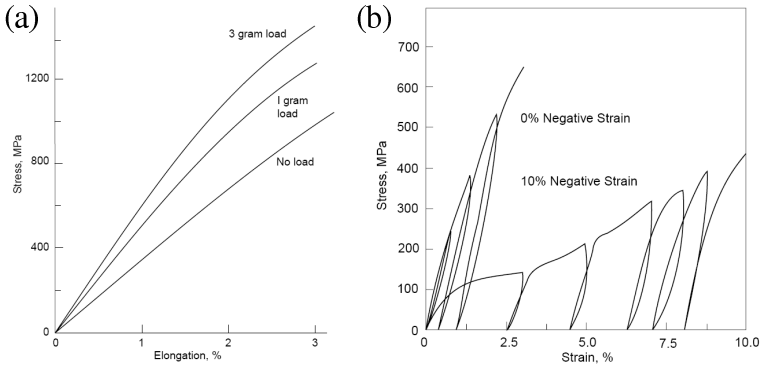


Figure 4.2: Effet du séchage sous contrainte de (a) traction et (b) compression axiale sur les courbes de contraintes-déformations de fibre de bois d'été jamais séché de pin. Les essais de traction sont réalisés avec une distance entre mors de 1.2 mm.

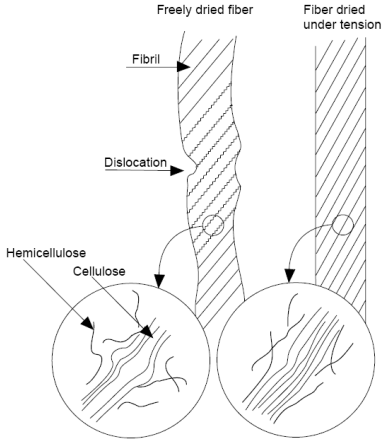


Figure 4.3: Représentation schématique des changements microstructuraux probablement impliqués dans l'effet Jentzen.

microfibrillaire, ce qui revient au cas précédemment étudié, et d'autre part, lors de ce chargement, les défections de la fibre seraient en partie gommées et les chaînes de celluloses et d'hémicelluloses réarrangées comme le suggère schématiquement la Fig. 4.3. Enfin, si une fibre est séchée puis re-mouillée, puis re-séchée sous chargement, l'effet Jentzen n'a plus lieu. Ceci met en évidence que les conditions de séchages peuvent causer des changements irréversibles de la structure de la paroi de la fibre.

Comportement des fibres dans le réseaux

Lorsque le papier est soumis à des sollicitations mécaniques, les réactions des fibres et des liaisons ne sont pas indépendantes. Cette partie vise à cerner les liens existant entre les caractéristiques mécaniques de la fibre et de la liaison.

À toute déformation de liaison correspond une déformation du segment de la fibre de cette

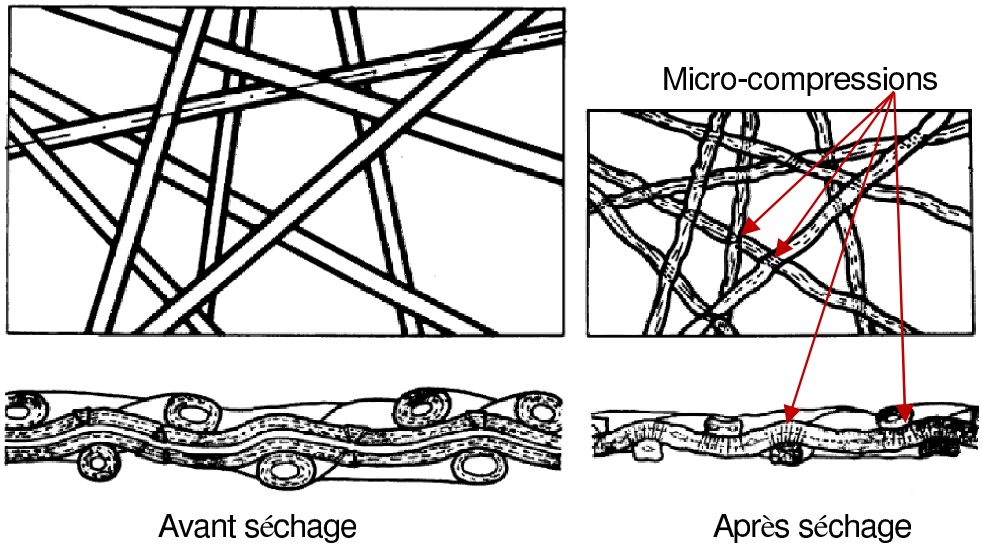


Figure 4.4: Représentation schématique des changements microstructuraux se produisant à l'échelle du réseau fibreux au cours du séchage, montrant en particulier le phénomène de microcompression apparaissant lors de la formation des liasons entre fibres.

liaison. La réponse mécanique de la liaison ne peut pas être séparée de la réponse de la partie liée de la fibre. Les propriétés mécaniques du papier peuvent être entièrement décrites par les propriétés des segments de fibres libres et liés. Dans cette approximation, l'unique rôle de la liaison est de définir à quel endroit la surface d'une fibre est en contact avec la surface d'une autre. La détermination de la résistance d'une liaison correspond à la détermination de sa résistance au cisaillement. Il s'agit de la charge maximale appliquée dans le plan de l'air de liaison que la liaison peut supporter. De manière expérimentale, elle peut être mesurée en séchant deux fibres dont la liaison forme un angle droit, puis en appliquant une force croissante à l'extrémité de l'une des fibres, l'autre étant maintenue, jusqu'à rupture de la liaison. Enfin, à cause des contraintes internes générées par l'étape de séchage, il est probablement impossible de changer les propriétés de résistance de la liaison sans changer les propriétés mécaniques du segment de la fibre liée.

Pendant le séchage, l'effort appliqué au niveau macroscopique est distribué dans le réseau de fibres en fonction de la structure locale. Il s'ajoute aux contraintes liées au rétrécissement transversal de la fibre, qui cause les micro-compressions dans la zone liée (Fig. 4.4). Dans les feuilles séchées sous contrainte uni axiale, le rétrécissement axial de la fibre est dix fois plus petit que le rétrécissement transversal, dans la direction où le rétrécissement macroscopique de la feuille est contraint. Dans la direction latérale de la feuille, où le rétrécissement lié au séchage est libre, la différence entre le rétrécissement axial et transversal est plus petit mais signifiante. Le rétrécissement lié au séchage est une moyenne entre segments libres et liés. Les deux types de segments rétrécissement de manière différente pendant le séchage. Pour

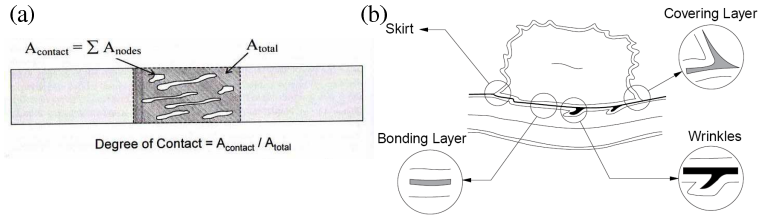


Figure 4.5: (a)Représentation schématique des aires de contacts entre deux fibres après séchage. (b) Caractéristiques structurelles des liaisons entre fibress selon [29]

les segments liés, trois types de forces déterminent la compression axiale : les forces de compressions liées au rétrécissement transverse des fibres qui la croise, des efforts de tension ou compression provenant des contraintes macroscopiques de séchage et des efforts de réaction liés à la raideur axiale du segment lié. Pour les segments libres, les forces de compression proviennent surtout du rétrécissement du segment lié voisin. Cette force est transmise au réseau environnant, et est ainsi plus faible que la force de compression agissant directement sur le segment lié. Les deux autres forces citées précédemment sont aussi présentes dans le cas de segments libres. Au final, les segments libres se compriment moins que les segments liés. Le degré de liaison du réseau détermine la proportion relative de segments libres et liés, donc affecte les rétrécissements locaux.
En raison de l'irrégularité du réseau, il y a une large distribution du retrait (ou de la traction) que voient les segments liés et les segments libres. La connectivité du réseau, liée à la masse volumique des papiers, influence la proportion de segments liés par rapport aux segments libres. Pour conclure, le papier ne consiste pas en un réseau de fibres homogènes dont les propriétés mécaniques sont uniques. En fait, les propriétés de chaque segment de fibre varient en fonction de la géométrie locale et des contraintes internes qui se créent pendant le séchage.

4.2.2 Comportement des liaisons

Les liaisons entre les fibres commencent à exister alors qu'elles sont encore immergées. La contraction transverse de la fibre lors du séchage crée des contraintes de compressions au niveau de l'aire de contact entre les fibres et contraint la liaison à se plisser (flambement local) comme indiqué sur la Fig. 4.5. Ces plis sont appelés des microcompressions. Elles sont approximativement perpendiculaires à l'axe de la fibre la moins résistante et ne s'étendent pas forcement sur toute la largeur de l'aire de liaison.
La liaison formée après séchage présente quatre particularités principales [29]. La première est une couche d'interface entre les deux fibres. Il s'agit d'une couche amorphe constituée de microfibrilles et de fines. La seconde particularité est l'existence des plis présentés au paragraphe précédent. La troisième particularité est la présence d'une fine couche de recouvre-

ment à l'extrémité de la liaison composée de microfibrilles et de fines. La quatrième particularité est une déformation de la paroi de la fibre à l'extrémité de la liaison, due à l'affaissement de la couche S_1 de la fibre.
Les principaux mécanismes permettant le développement et l'amélioration de l'adhésion entre deux fibres sont multiples et complexes. Le mécanisme d'imbrication (interlocking) correspond à l'ajustement géométrique des deux fibres lors du pressage et du séchage. Il est favorisé par la fibrillation de la fibre qui augmente l'enchevêtrement. Pour ce mécanisme, les liaisons moléculaires ne sont pas nécessaires. Le mécanisme de diffusion (interdiffusion) consiste en une migration de molécules d'une fibre à l'autre pour créer des liaisons entre surfaces, et ainsi augmenter l'adhésion. Au niveau moléculaire, les liaisons sont principalement dues à des liaisons hydrogènes entre les différents polymères constituant la fibre. On distingue les liaisons hydrogènes entre les fibres, entre les microfibrilles et entre les molécules glucosées de la cellulose. Les premières maintiennent les fibres entres elles dans le papier pour former un réseau, les suivantes donnent aux fibres leur rigidité structurelle et les dernières permettent de former la molécule de cellulose. Ces trois types de liaisons hydrogènes ont généralement des résistances différentes. Les forces de Van der Waals ont aussi un rôle important dans la liaison entre les fibres. Leur énergie de liaison est plus faible (2-8k̃J/mol) que celle des liaisons hydrogènes (8-32 kJ/mol) mais leur effet s'étend de 0,3 à 0,5ñm contre 0,17 nm pour les liaisons hydrogènes. La cohésion du papier mouillé sur la toile la toile de formation provient par exemple des forces de Van der Waals. Enfin, les interactions électrostatiques contribueraient de manière significative aux interactions moléculaires dans la zone de contact entre les fibres.
Les liaisons entre fibres sont souvent vues comme des interfaces permettant de transmettre les efforts d'une fibre à l'autre. La détermination de leur raideur de cisaillement consiste à déterminer la charge maximale appliquée à l'une des deux fibre en liaison lorsqu'elle est déplacée parallèlement au plan de la zone de liaison [65, 45]. Pour caractériser la raideur des liaisons, une autre approche consiste en une mesure indirecte de l'énergie nécessaire à la délamination hors plan du papier. Ce type d'essai présente l'inconvénient d'intégrer d'autres mécanismes consommant de l'énergie dans le papier telle que la flexion du papier.
Un paramètre important pour la caractérisation des propriétés mécaniques des liaisons est l'aire effective de contact entre les fibres. Plusieurs méthodes ont été développées afin d'effectuer cette mesure.
L'ordre de grandeur de la charge de rupture d'une liaison entre fibres de bois d'hiver issues de pin Loblolly est de 4,6 mN pour une aire de liaison de 2410 μm^2 et de 8,5 mN pour une aire de liaison de 1500 μm^2 dans le cas des fibres de bois d'été [65]. Ces valeurs sont environ 20 fois plus faibles que les raideurs des fibres correspondantes. Toutefois, les opérations unitaires de fabrication des papiers ont un impact sur les microstructures, notamment à cause des mécanismes d'activation développés lors du séchage. Il est donc nécessaire de pouvoir accéder aux propriétés mécaniques des liaisons à l'intérieur des réseaux fibreux. Des

travaux actuels basés sur l'utilisation de micro et nanorobots vont dans ce sens [58] : ils ne permettent actuellement que de caractériser les propriétés mécaniques de liaisons isolées mais devraient à terme s'étendre à de la caractérisation des liaisons dans les réseaux. En bref, peu d'études concernent la caractérisation des propriétés mécaniques des liaisons et encore moins sur l'étude de ces propriétés dans le réseau soumis à des variations des paramètres de fabrication des papiers.

4.3 Approches micro-mécaniques du comportement du papier

Préludes

- Une des premières modélisation mécanique de réseaux de fibres papetières a été présentée par Cox en 1952 [12]. Ce modèle se limite à l'étude du domaine élastique et à la résistance à la traction des papiers. Il se base sur un réseau homogène de fibres droites, élancées et de longueurs infinies, orientées suivant une fonction de distribution statistique. Les fibres sont ininterrompues d'un bord à l'autre du réseau sans interaction entre les fibres. À partir de la connaissance de l'aire de la section des fibres, du module de Young des fibres E_f et de la masse volumique du réseau, le modèle prédit le module de Young E_p, le module de cisaillement ainsi que le coefficient de Poisson du réseau. Le module de Young obtenu par ce modèle est proportionnel à celui des fibres qui composent le réseau et le coefficient de proportionnalité α est une fonction de l'orientation des fibres dans le réseau :

  $$E_p = \alpha E_f, \tag{4.4}$$

  Dans le cas d'un réseau isotrope, $\alpha = 1/3$. Compte-tenu des hypothèses de ce modèle où le comportement mécanique des liaisons n'est pas pris en compte, les raideurs obtenues sont surévaluées par rapport à des réseaux réels de fibres cellulosiques, mais donnent toutefois une borne supérieure pour ces valeurs.

- Concernant la résistance à la traction, Kane ([35, 36]) a développé un modèle qui combine les interactions des raideurs des fibres et des liaisons en prenant en compte les distributions de longueurs des fibres afin de déterminer la résistance à la traction des papiers.

- Le modèle KBP développé par Kallmes, Bernier et Perez [30, 32, 33, 34] est basé sur les hypothèses de Cox d'un papier idéal, ainsi que sur les lois de comportement des liaisons entre fibres et sur la définition d'évènements critiques au sein du papier : fracture de fibres ou arrachage de liaisons. Le module de Young du papier est prédit de manière similaire au modèle de Cox et la partie inélastique de la courbe contrainte-

déformation est obtenue en faisant l'hypothèse que la déformation plastique est causée par les ruptures des liaisons. La prédiction de ces ruptures suit deux schémas différents, suivant que la liaison est faible ou forte. Pour les liaisons faibles, elles apparaissent lorsque les déformations de la feuille atteignent une déformation critique au maximum de la courbe contrainte-déformation. Pour les liaisons fortes, elles apparaissent lorsque les déformations de la feuille atteignent la déformation de rupture de la fibre. Cette hypothèse est une des idées importante de ce modèle. La résistance à la traction de la feuille est obtenue par calcul de la contrainte correspondant à la déformation critique de la feuille. Les expressions diffèrent selon que le réseau fibreux est composé de liaisons faibles ou de liaisons fortes entre les fibres.

Modélisation semi-empirique de Page

- La modélisation de Page [49] permet de prédire une expression semi-empirique de l'effort de rupture des papiers isotropes en supposant que la résistance maximale à la traction est obtenue lorsque seules cassent les fibres sans rupture des liaisons. Page fait comme hypothèse que la résistance de la feuille dépend uniquement de la résistance à la traction de la fraction de fibres mise en jeu lors d'essais de traction à mors jointifs. La seconde hypothèse de ce modèle est que le rapport entre le nombre de fibres extraites et le nombre de fibres cassées le long de la ligne de fracture est égal au rapport de la forces de rupture sur la force requise pour extraire la fibre du réseau. Cette dernière est déterminée par la surface totale des liaisons des fibres avec la fibre concernée et par l'effort de cisaillement de la liaison par unité d'aire. Ces hypothèses conduisent à l'équation de Page :

$$\frac{1}{T} = \frac{9}{8Z} + \frac{12 A_f \rho_f}{bP\lambda RBA}, \tag{4.5}$$

avec T l'indice de traction (kN.m.kg^{-1}), Z l'indice de traction à mors jointifs (kN.m.kg^{-1}), A_f l'aire de la section de la fibre (m^2), ρ_f la masse volumique (kg.m^{-3}), b la résistance au cisaillement de la liaison (N.m^{-2}), P le périmètre de la section de la fibre (m), λ la longueur de la fibre (m) et RBA l'aire relative de liaison.
L'intérêt majeur de ce modèle est de donner explicitement le lien entre la résistance à la traction de la feuille et les propriétés du réseau fibreux.

- Des travaux ultérieurs de Page et Seth [51] s'intéressent plus particulièrement aux propriétés élastiques des papiers. Ils considèrent des papiers composés de fibres de longueurs finies dont les efforts sont transmis de l'une à l'autre, dans les régions proches de leurs extrémités, par l'intermédiaire de contraintes de cisaillement dans les liaisons. À partir des données à l'échelle microscopique du module de cisaillement moyen des

liaisons G_f, de leur RBA moyenne, des longueurs L et largeurs w moyennes des fibres ainsi que leur module de Young moyen E_f, il détermine le module de Young de la feuille E_p à l'échelle macroscopique.

Modèles discrets multi-échelles

Les travaux des dix dernières années se basent sur les modèles micromécaniques décrits précédemment mais s'attachent à spécifier des propriétés non plus moyennes, mais propres à chaque fibre ou liaison en incorporant ou non des distributions de propriétés.

- Les travaux de Bronkhorst [8] sont basés sur des réseaux fibreux sous forme de treillis sur lesquels sont simulés numériquement des déformations élasto-plastiques des papiers. Ces résultats sont ensuite comparés à des résultats expérimentaux. Le réseau simulé en deux dimensions est composé d'éléments élasto-plastiques connectés de façon rigide. Les perspectives de ces travaux consistent à modéliser les réseaux en 3D ainsi qu'à incorporer un comportement des liaisons plus réaliste.

- Afin de modéliser discrètement la fracture dans les papiers, Liu et al. [42] ont plus récemment proposé une modélisation 2D intégrant le comportement des liaisons à la rupture, basé sur une contrainte de cisaillement seuil au delà de laquelle la liaison se rompt.

- D'autres travaux similaires de modélisations discrètes ont été menés sur des matériaux non papetiers, tels que les études de Ridruejo et al. [55] sur des fibres de verre où le comportement des contacts entre fibre intègre les dissipations énergétiques liées aux frottements.

- Heyden considère des réseaux à deux et trois dimensions pour étudier par des simulations numériques l'endommagement des papiers [19, 20, 16]. Les réseaux de fibres peuvent être anisotropes en suivant une distribution d'orientation des fibres, composés de fibres courbes (ou droites) prenant en compte les distributions de longueurs, courbure, air de la section, moment d'inertie, module d'élasticité, contrainte normale ultime et contrainte de cisaillement ultime. Le modèle ne prend pas en compte les effets de deuxième ordre : baisse de la raideur liée aux efforts de compressions dans la fibre, le possible flambement de la fibre. Les fibres sont modélisées par des poutres planes droites ou courbes à section rectangulaire, possédant une raideur axiale et des modes de déformation en flexion plane. Les fibres présentent un comportement élastique linéaire. Un critère supplémentaire est associé à la loi de comportement de la fibre afin de prédire la rupture de celle-ci. Les liaisons sont aussi modélisées dans cette étude. Elles sont décrites par un assemblage de 3 ressorts non couplés dans les directions linéaires x et y et en rotation autour de z dans le cas plan. Le critère de rupture de la liaison permet de rendre compte des successions de glissements des fibres l'une sur l'autre avant

rupture complète de la liaison. Il consiste à diminuer par un facteur donné la raideur du ressort à chaque fois qu'une force ultime est atteinte. Cette opération est répétable jusqu'à ce que la raideur de la liaison passe sous un seuil et qu'elle soit considérée comme rompue.

- D'autres études encore se sont plus particulièrement focalisées sur les mécanismes de propagation de fissures dans des modélisation de type treillis : Astrom et Niskanen [4], Fleck et Qiu [14] ou encore Persson et Isaksson [53].

- Les travaux de Alfthan et Gudmundson [1, 2] se basent sur des réseaux de fibres longues et élancées comprenant peu de liaisons par fibre. Les fibres sont modélisées par des poutres de mêmes longueurs suivant un comportement élastique et isotrope transverse puis le comportement de fluage de la fibre est intégré dans Alfthan et al. [1]. Les liaisons sont modélisées par des éléments capables de transférer les forces et les moments d'une fibre à l'autre. Les auteurs utilisent aussi un modèle de réseau simplifié s'appuyant plus particulièrement sur le comportement des fibres pour étudier comment la redistribution des contraintes au niveau des liaisons agit sur le fluage accéléré.

- La suite de cette étude est poursuivie par Strömbro et Gudmundson [66, 67]. Elle aborde le chargement en traction et surtout en compression des papiers dans l'optique d'étudier le fluage mécanosorptif. L'étude en compression s'appuie sur des modifications des fibres : mise en place de coudes sur la fibre modélisés par des ressorts de torsion. Le comportement macroscopique est obtenu par homogénéisation. Les travaux ultérieurs de Strömbro et Gudmundson consistent à intégrer au modèle précédent le comportement anisotrope dans la distribution des fibres ainsi que des variations au niveau des coudes des fibres.

Bibliographie

[1] J. Alfthan P. Gudmundson, S. Östlund, A micro-mechanical model for mechano-sorptive creep in paper, J. Pulp Paper Sci., 28(3), 98–104, 2002

[2] J. Alfthan P. Gudmundson, Linear constitutive model for mechano-sorptive creep in paper, International Journal of Solids and Structures, 42:6261–6376, 2005.

[3] J. G. Anderson, R. F. Edgar, Fiber-oientation anisotropy using a microwave moisture meter, Tappi 70(10):133–135.

[4] J. A. Åstrom, K. J. Niskanen, Symmetry-breaking fracture in random fibre networks. Europhysics Letters, 21:447–562, 1983.

[5] A. C. Barefoot, R. G. Hitchings, E. L. Ellwood, Wood characteristics and kraft paper properties of few selescted loblollly pines. I. Effect of fiber morphology under identical cooking conditions, Tappi 47(6):343–356, 1964.

[6] W. Bauer, H. Stark, On the measurement of fiber orientation in paper sheet using laser light, Wochenbl. Papierfabrik, 11/12:461 (en allemand), 1988.

[7] R. Boulay, B. Drouin, R. Gagnon, Measurement of lod=cal fibre orientation variations, J. Pulp Pap. Sci. 12(6):J177–J181, 1986.

[8] C. A. Bronkhorst, Modelling paper as aa two-dimensional elastic-plastic stochastic network. International Journal of Solids and Structures, 40:5441–5454, 2003.

[9] J. d'A. Clark, The measurement and influence of fiber length, Paper Trade J. 115(26):36–42, 1942.

[10] J. d'A. Clark, Effect of fiber coarsness and length. I. Bulk, burst, tear, fold, and tensile tests, Tappi 45(8):628–634, 1962.

[11] H. Corte, O. J. Kallmes, Statistical geometry of a fibrous network, In: Formation ans Structure of Paper, Vol. 1, F. Bolam, ed. British Paper and Board Makers Assoc., London, 13–52, 1962.

[12] H. L. Cox, The elasticity and strength of paper and other fibrous materials, British Journal of Applied Physics, vol 3, 72–79, 1952.

[13] J. M. Dinwoodie, The relationship between fiber morphology and paper properties: A review of literature, Tappi 48(8):440–447, 1965.

[14] N. A. Fleck, X. M. Qiu, The dammage tolerance of elastic-brittle, two-dimensional isotropic lattices, International Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 55:562–588, 2007.

[15] O. L. Forgacs, I. Strelis, The measurement of the quantity and orientation of chemical pulp fibres in surfaces of newsprint, Pulp Paper Mag. Can. 64(1):T3–T13, 1963.

[16] N. Gurnagul, D. H. Page, R. S. Seth, Dry sheet properties of Canadian hardwood pulps, J. Pulp Pap. Sci. 16(1):J36–J41, 1990.

[17] C. C. Habeger, G. A. Baum, The use of microwave attenuation as a measure of fiber orientation anisotropy, Tappi 70(2):109–113, 1987.

[18] T. R. Hess, P. H. Brodeur, Effects of wet straining and drying on fibre orientation and elastic stiffness orientation, J. Pulp Paper Sci. 22(5):J160–J164, 1996.

[19] S. Heyden, P. J. Gustafsson, Simulation of fracture in a cellulose fiber network, J. Pulp Pap. Sci., 24, 160–165, 1998.

[20] S. Heyden, Network modelling for the evaluation of mechanical properties of cellulose fibre fluff, PhD. Thesis, Lund Unversity, Lund, Sweden, 2000.

[21] S. Heyden, P. J. Gustafsson, Stress-strain performance of paper and fluff by network modelling, 12th Fundamental Research Symposium, Oxford, September 2001.

[22] H. G. Higgins, J. de Yong, V. Balodis, F. H. Phillips, J. Colley, The density and structure of hardwoods in relation to paper surface characteristics and other properties, Tappi 56(8):127–131, 1973.

[23] W. L. Ingmanson, E.F. Thode, Factors contributing to the strength of a sheet of paper, Tappi J., 42(1):83–93, 1959.

[24] D. Jeulin, Homogénéisation En Mécanique Des Matériaux. Hermes, 4, 93, 2001.

[25] A. R. Jones, An experimental investigation of the in-plane elastic moduli of paper. Ph. D. Thesis, Institute of Paper Chemestry, Appleton, WI, 1967.

[26] O. J. Kallmes, G. A. Bernier, The structure of Paper. 3. The absolute, relative and maximum bonded areas of fiber networks, Tappi 45(11):867–872, 1962.

[27] O. J. Kallmes, G. A. Bernier, The structure of Paper. 4. The free fiber length of a multiplanar sheet, Tappi 46(2):108–114, 1963.

[28] O. J. Kallmes, H. Corte, G. A. Bernier, The structure of Paper. 5. The bonding states of fibers in randomly formed paper, Tappi 46(8):493–502, 1963.

[29] O. J. Kallmes, G. A. Bernier, The structure of Paper. 8. Structure of idealized nonrandom networks, Tappi 47(11):694–703, 1964.

[30] O. J. Kallmes, M. Perez, A New Theory for the Load/Elaongation Properties of Paper, in Consolidation of the Paper Web - Transactions of the Third Fundamental Research Symposium Held at Cambridge, Bolam, F., Ed., British Paper and Board Makers Association, London, U. K., 779, 1966.

[31] O. J. Kallmes, Technique for determining the fiber orientation distribution throughout the thickness of a sheet, Tappi 52(3):482–485, 1969.

[32] O. J. Kallmes, The Influence of Nonrandom Fiber Orientation and Other Fiber and Web Parameters on the Tensile Strength of Nonwoven Fibrous Webs, in Theory and Design of Wood and Fiber Composite Materials, Jayne, B. A., ed., Syracuse University Press, New York, 177, 1972.

[33] O. J. Kallmes, G. A. Bernier, M. Perez, A Mechanistic Theory of the Load-Elongation Properties of Paper - in four parts, Paper Technology and Industry, Part 1 - 18:7, 222; Part 2 - 18:8, 243; Part 3 - 18:9, 383; Part 4 - 18;19, 328, 1977.

[34] O. J. Kallmes, G. A. Bernier, M. Perez, A Mechanistic Theory of the Load-Elongation Properties of Paper - A Descriptive Summary, Paper Technology and Industry, 19:9, 311, 1978.

[35] M. W. Kane, The Effect of Beating on Fibre Length Distribution - Part I, Pulp Paper Mag. Canada, 60:10, T308, 1959.

[36] M. W. Kane, Beating, Fibre Length Distribution and Tensile Strength - Part II, Pulp Paper Mag. Canada, 60:12, T359, 1959.

[37] L. Kappel, U. Hirn, W. Bauer, R. Schennach, A novel method for the determination of bonded area of individual fibre-fibre bonds, Nord. Pulp Pap. Res. J., 24(2), 199–203, 2009.

[38] L. Kappel, U. Hirn, E. Gilli, W. Bauer, R. Schennach, Revisiting polarized light microscopy for fiber-fiber bond area measurement - Part I: Theoretical fundamentals, Nord. Pulp Pap. Res. J., 25(1), 65–70, 2010.

[39] L. Kappel, U. Hirn, E. Gilli, W. Bauer, R. Schennach, Revisiting polarized light microscopy for fiber-fiber bond area measurement - Part II: Proving the applicability, Nord. Pulp Pap. Res. J., 25(1), 71–75, 2010.

[40] R. U. Kellogg, E. Thykeson, W. G. Warren, The influence of wood and fiber properties on kraft converting. Paper quality, Tappi 58(12):113–116, 1977.

[41] P. Kubelka, F. Munk, Ein Beitrag zur Optik der Farbanstriche, Z. Tech. Phys. (Leipzig), 12, 593–601, 1931.

[42] J. X. Liu, Z. T. Chen, K. C. Li, A 2-D lattice model for simulating the failure of paper. Theoritical and Applied Fracture Mechanics, 54:1–10, 2010.

[43] C. Marulier, P. J. J. Dumont, L. Orgéas, D. Caillerie, S. Rolland du Roscoat, Towards 3D anaysis of pulp fibre networks at the fibre and bond levels, Nord. Pulp Pap. Res. J., 28(2), 245–255, 2012.

[44] C. Marulier, P. J. J. Dumont, L. Orgéas, D. Caillerie, S. Rolland du Roscoat, 3D analysis of microstructural properties of paper fibrous networks at fibre and bond scale, Cellulose, à paraitre.

[45] G. Matheron, Eléments Pour Une Théorie Des Milieux Poreux, Masson et Cie, 1967.

[46] R. Morton, An Introduction to Automatic image Analysis, Bausch & Lomb Analytical Systems Div;, Rochester, NY, non daté.

[47] H. Nanko, J. Ohsawa, Fundamentals of Papermaking (C. F. Baker, V. W. Punton, Eds.), Mech. Eng. Publ., London, vol. 1, 786–830, 1989, and H. Nanko, J. Ohsawa, A. Okagawa, J. Pulp Pap. Sci., 15(1):J17, 1989.

[48] D. H. Page, P. A. Tydeman, M. Hunt, A study of fibre-to-fibre bonding by direct observation, In: Formation and Structure of Paper, F. Bolam, ed., British Paper and Board Makers Assoc., London, 171–193, 1962.

[49] D. H. Page, A Theory for the Tensile Strength of Paper, Tappi J. 52:4, 674, 1969.

[50] D. H. Page, R. S. Seth, J. H. DeGrâce, The elastic modulus of paper. 1. The controlling mechanisms, Tappi 62(9):99–102, 1979.

[51] D. H. Page, R. S. Seth, The elastic modulus of paper, Part 2 - The importance of fiber modulus, bonding, and fiber length, Tappi, 63(6), 113–116, 1980.

[52] R. W. Perkins, Mechanical behavior of paper in relation to its structure, In: The Cutting Edge, Institute of Paper Chemestry, Appleton, WI, 89–111, 1980.

[53] J. Persson, P. Isaksson, A particle-based method for mechanical analyses of planar fiber-based materials, Int. J. Numer. Engng, 93:1216–1234, 2013.

[54] R. E. Prod'homme, N. V. Hien, J. Noah, R. H. Marchessault, Determination of fiber orientation of cellulosic samples by X-ray diffraction. J. Appl. Polym. Sci. 19:2606–2620, 1975.

[55] A. Ridruejo, C. González, J. L. Lorca, Damage micromechanisms and notch sensitivity of glass-fiber non-woven felts: An experimental and numerical study. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2010.

[56] S. Rolland du Roscoat, M. Decain, C. Geindreau, X. Thibault, J.-F. Bloch, Microstructural analysis of paper using synchrotron X-ray microtomography: numerical estimation of the permeability and effective thermal conductivity, Appita J., 61, 286–301, 2008.

[57] H. Ruck, H. Krässig, The determination of fiber orientation in paper, Pulp Paper Mag. Can. 59(6):183–190, 1958.

[58] P. Saketi, M. Mikczinski, S. Fatikow, P. Kallio, Investigation of aged fibre-fibre bonde with micro and nanorobotic tools, (not published yet), 2013.

[59] W. W. Sampson, The structural characterisation of fibre networks in papermaking processes - A review, 12th Fundamental Research Symposium, Oxford, September 2001.

[60] R. S. Seth, Fiber quality factors in papermaking. I. The importance of fiber length and strength, Proc. Mater. Res. Soc. Symp., Vol. 197, Materials Research Society, 125–141, 1990.

[61] R. S. Seth, Fiber quality factors in papermaking. II. The importance of fiber coarsness, Proc. Mater. Res. Soc. Symp., Vol. 197, Materials Research Society, 143–161, 1990.

[62] V. C. Setterholm, W. A. Chilson, Tappi 48(11):634, 1965.

[63] V. C. Setterholm, E. W. Kuenzi, Fiber orientation and degree of restraint during drying. Effect on tensile anisotropy of paper handsheets, Tappi 53(10):1915–1920, 1970.

[64] J. Silvy, Structural study of fiber networks: The cellulosic fiber case. D. Sci. Thesis, Univ. Grenoble, 1980.

[65] R. Stratton, Material Interactions Relevant to the Pulp, paper and Wood Industries (D. F. Caulfield, J. D. Passaretti, and S. F. Sobczynski, Eds.), Symp. Proc. Vol. 197, Materials Research Soc., Pittsburgh, 173–181, 1990.

[66] J. Strömbro, P. Gudmundson, Mechano-sorptive creep under compressive loading - A micromechanical model, International Journal of Solids and Structures, 45:2420–2450, 2008.

[67] J. Strömbro, P. Gudmundson, An anisotropic fibre-network model for mechano-sorptive creep in paper, International Journal of Solids and Structures, 45:5765–5787, 2008.

[68] C.I. Thomson, R.M. Lowe, A.J. Ragauskas, Imaging celulose fibre interfaces with fluorescence microscopy and resonance energy transfer, Carbohyd. Polym., 69(4), 799–804, 2007.

[69] C.I. Thomson, R.M. Lowe, A.J. Ragauskas, First characterization of the development of bleached kratf softwood pulp fiber interfaces during drying and rewetting using FRET technology, Holzforschung, 62, 383–388, 2008.

[70] C. Thomson, R. Lowe, D. Page, A. Ragauskas, Exploring fibre-fibre interfaces via FRET and Fluorescence micoscopy, J. Pulp Pap. Sci., 34(2), 113–119, 2008.

[71] J. L. Thorpe, Determination of fibe orientation in z-directional layers of paper by resin Hough transformation, Empire State Paper Res. Inst. Rep. No 108, 80–89, 1998.

[72] Toll S., Note: On the tube model for fiber suspensions, J. Rheol. 37, 123–125, 1993.

[73] Toll S., Packing mechanics of fiber reinforcements, Polym. Eng. Sci. 38, 1337–1387, 1998.

[74] A. Torgnysdotter, A. Kulachenko, P. Gradin, L. Wågberg, Fiber/Fiber Crosses: Finite Element Modeling and Comparison with Expermiment, Journal of Composite Materials, 41(13), 1603–1618, 2007.

[75] M. Wiltsche, M. Donoser, J. Kritzinger, W. Bauer, Automated serial sectioning applied to 3D paper structure analysis, J. Microsc., 242, 197–205, 2011.

[76] C. F. Yang, C. M. Crosby, C. M. Eusufzai, A. R. K., R. E. Mark, Determination of paper sheet fiber orientation distribution by a laser optical diffraction method, J. Appl. Polym. Sci. 34:1145–1157, 1987.

Partie II

Papiers modèles

Chapitre 5

Papiers modèles

Dans ce chapitre, nous décrivons les matières premières utilisées pour fabriquer les papiers modèles étudiés dans ce travail. Les procédés de fabrication de ces papiers sont également brièvement présentés. Un premier aperçu des propriétés structurales des fibres et des papiers modèles est également donné, même si les chapitres suivants traiteront ce problème de manière détaillée.

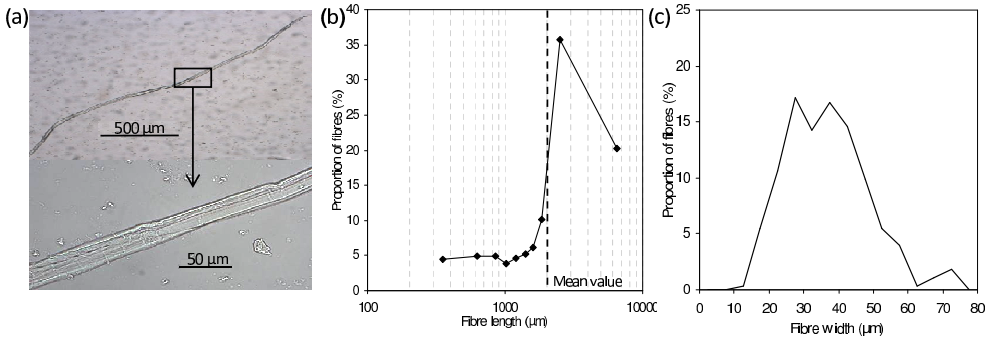


Figure 5.1: (a) Vue au microscope optique d'une fibre de pin maritime extraite de la pâte à papier utilisée dans les papiers modèles. Distribution de la longueur (b) et de la largeur (c) des fibres de pin maritime après l'opération de classage.

5.1 Fibres de pâte à papier

Les fibres utilisées pour fabriquer les papiers modèles sont issues d'une pâte kraft blanchie de résineux. Ce sont des fibres de pin maritime qui ont été choisies en raison de leur longueur plutôt importante (pour une grande partie d'entre elles plus de 2 mm de longueur) facilitant ainsi leur mise en œuvre et leur observation. La pâte à papier brute se présente sous la forme de grandes feuilles sèches de grandes dimensions : 600 mm × 600 mm × 2-3 mm.

Les images des figures 5.1(a) et 5.2(a), obtenues respectivement par microscopie optique et MEB, présentent l'aspect typique de ces fibres. La figure 5.2(b) est une image 3D d'une fibre de cette même pâte acquise par microtomographie à rayons X sur la ligne ID19 de l'ESRF à une résolution de 0.35 μm par voxel. Dans cette vue, il est intéressant de remarquer l'aspect plutôt aplati des sections droites de cette fibre où il est difficile de distinguer le lumen de la fibre. Cet aspect est caractéristique des fibres papetières et provient des modifications structurales de la paroi des fibres engendrées par les traitements d'extraction. La géométrie des sections droites des fibres peut par ailleurs évoluer en fonction des paramètres des opérations unitaires de fabrication des papiers comme nous le verrons dans les chapitres suivants. À titre de comparaison, le lumen de fibres de bois qui n'auraient pas subi l'ensemble des traitements d'extraction reste en général ouvert comme nous pouvons l'observer sur la figure 5.3 pour une fibre d'épicéa commun également imagée par microtomographie à rayons X à deux niveaux d'Humidité Relative (HR). Remarquons également la présence de zones noueuses le long des fibres de pâte à papier, elles aussi typiques des fibres ayant subi un processus d'extraction chimique.

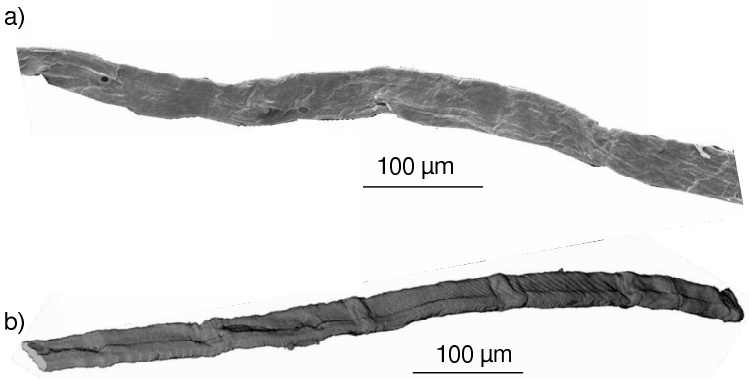


Figure 5.2: (a) Vue au MEB d'une fibre de pin maritime de la pâte à papier utilisée pour fabriquer les papiers modèles. (b) Image représentant une portions de fibre de pin maritime de la même pâte acquise par microtomographie à rayons X sur la ligne ID19 de l'ESRF à taille de voxel de 0.35 μm^3 reconstruite en mode de contraste de phase dit «Paganin», longueur imagée $\approx$ 0.7 mm. Image acquise dans le cadre du projet de longue durée *Heterogeneous Fibrous Materials* (2007-2012) de l'ESRF dont le LGP2 était responsable.

Dans son état initial, cette pâte contient une quantité importante de fibres de moins de 2 mm de longueur dont nous avons cherché à réduire la proportion. Pour cela, la pâte à papier a été mise en suspension dans l'eau après trempage pendant 12 h dans l'eau puis passage dans un pulpeur à une concentration comprise entre 30 à 40 g l^{-1}. Le pulpeur utilisé est un mélangeur dont les lames sont étudiées pour ne pas couper ni fibriller les fibres. La concentration de la suspension a ensuite été ajustée à 10 g l^{-1} puis une opération de classement des fibres a été effectuée grâce à un dispositif de fractionnement Bauer MacNett (Fig. 5.4). Cette mesure a été effectuée au moyen de l'appareil Morfi (Techpap, Grenoble) qui permet de déterminer

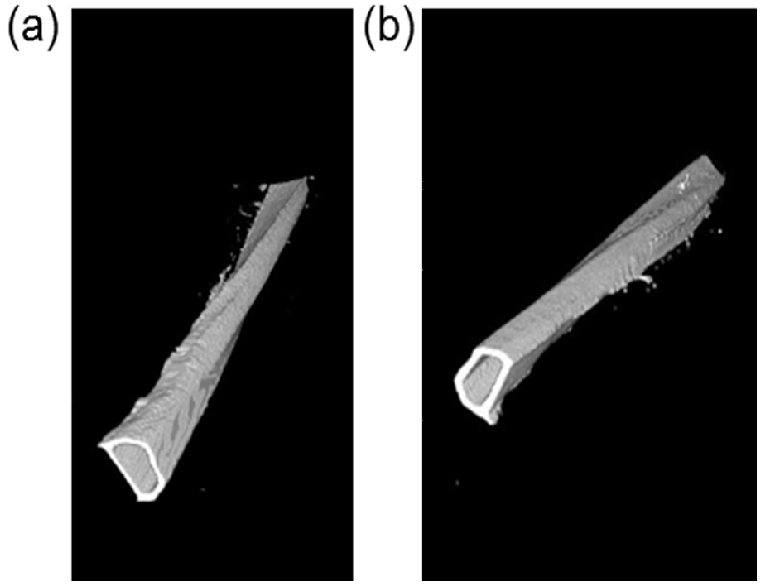


Figure 5.3: Vues 3D d'une fibre d'épicéa commun imagée par microtomographie à rayons X sur la ligne ID19 de l'ESRF (taille de voxel de 0.3 μm^3, reconstruction en mode d'absorption classique, longueur imagée $\approx$ 0.6 mm, «diamètre» de la fibre $\approx$ 25 μm). (a) 47 %HR ; (b) 80 %HR. Images acquises dans le cadre du projet de longue durée *Heterogeneous Fibrous Materials*.

automatiquement par des techniques d'analyse d'images la longueur, la largeur ainsi que d'autres paramètres morphologiques des éléments compris dans ce type de suspensions fibreuses. La figure 5.1(c) donne la distribution de largeur des fibres des suspensions utilisées dans ce travail, mesurée au moyen de ce même appareil.
Notons que lors de la préparation des fibres mises en œuvre dans ce travail, aucune opération de raffinage des fibres n'a été pratiquée pour ne pas détériorer la paroi des fibres ni les «fibriller» et conserver la géométrie la plus «simple» possible pour ces éléments.
Notons également que certaines fibres de cette pâte classée (0,5% de la masse totale des fibres en suspension) ont été colorées (colorant rouge Congo) pour qu'elles puissent servir de marqueurs et à estimer globalement l'orientation fibreuse dans les papiers modèles produits (voir ci-dessous). Un exemple de fibre colorée est donné sur la figure 5.5.

5.2 Élaboration des papiers modèles

Les fibres récupérées après l'opération de classage ont été ensuite mises à nouveau en suspension à des concentrations comprises entre 0,5 g l^{-1} et 1,3 g l^{-1} selon les grammages souhaités pour les feuilles de papiers modèles produites et les appareils utilisés pour fabriquer les papiers modèles (voir ci-dessous). Cette étape de classement a permis d'éliminer la majeure partie des éléments de la suspension dont la taille inférieure à 0,5 mm : voir la figure

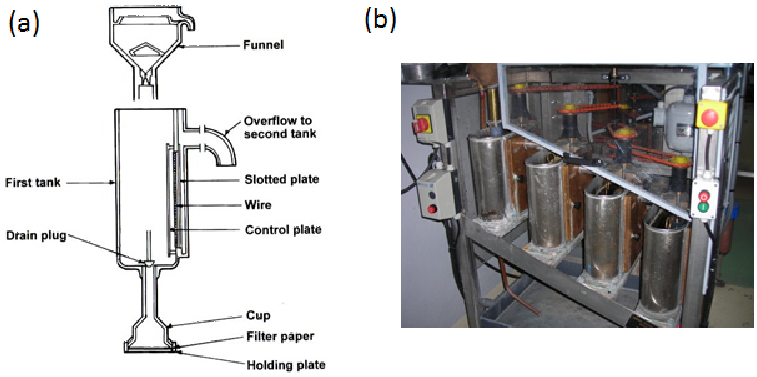


Figure 5.4: Schéma de principe du dispositif de fractionnement Bauer McNett dans lequel la suspension de fibres de pâte à papier doit passer au travers de plusieurs réservoirs disposés en cascade (a) et munis de grilles dont le pas est calibré et décroissant (b). Les fibres ne passant pas par exemple au travers de la grille du premier réservoir sont récupérées dans un récipient placé sous celui-ci. En ajustant le pas de la grille, il est possible de récupérer des fibres dont la longueur est par exemple majoritairement supérieure à 2 mm.

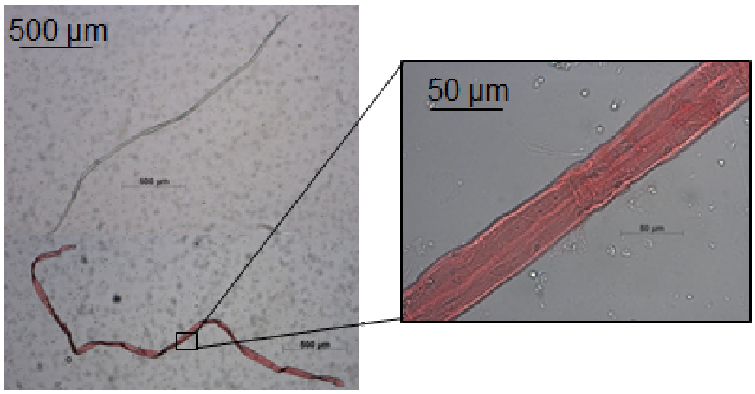


Figure 5.5: Fibre colorée de pin maritime (vue au microscope optique).

5.1(b) qui donne la distribution de la longueur des fibres après cette opération. Des feuilles de papier ayant un grammage de 40 g m^{-2} à orientation fibreuse isotrope dans le plan ou orientée dans leur plan ont ensuite été produites au laboratoire. La technique de fabrication en laboratoire diffère de la fabrication industrielle (voir chapitre 2), mais reproduit cependant les principales étapes du procédé : formation, pressage et séchage (Fig. 5.6).

Papiers isotropes 2D

Pour obtenir des papiers où les fibres ont une orientation isotrope dans le plan, nous avons utilisé un appareil particulier dit formette Frank (Rapid Köthen) pour former une feuille circulaire d'un diamètre de 200 mm. Le principe général de fonctionnement est présenté schématiquement sur la Fig. 5.7. Cet appareil permet principalement de réaliser, après avoir versé

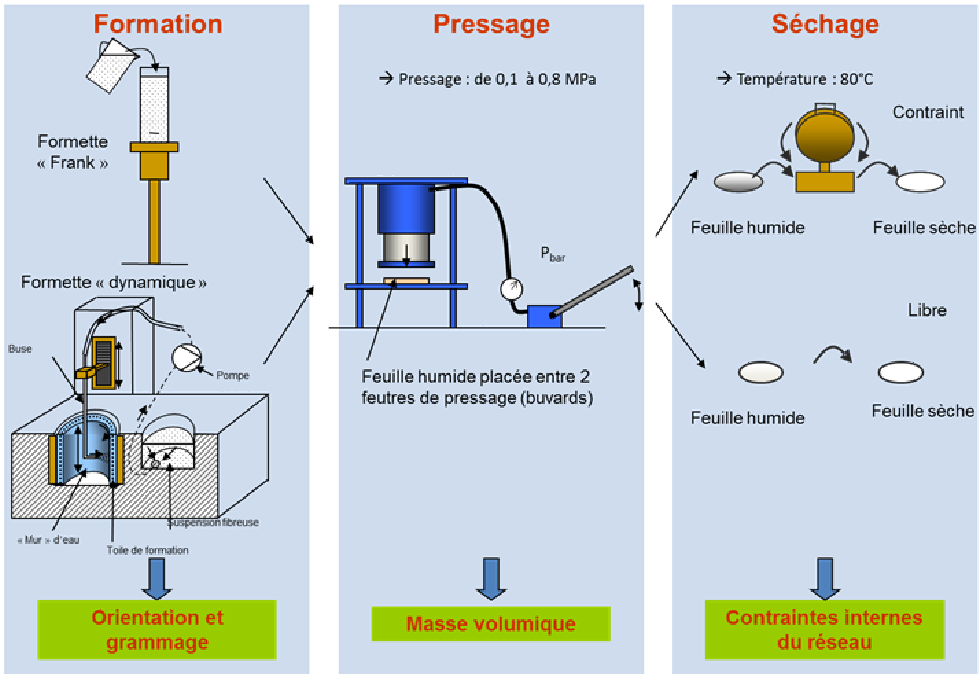


Figure 5.6: Principe de fabrication des papiers modèles dans le cas de structures isotropes ou orientées pour des séchages libres ou contraints.

la suspension fibreuse dans une colonne remplie d'eau (étapes 1 à 3), puis avoir réalisé un brassage par l'air (étape 4), l'égouttage des suspensions fibreuses (étape 5), dont les éléments viennent se déposer sur une toile de formation au cours du processus d'aspiration de l'eau de la colonne. Un pressage de la feuille de papier humide où la siccité est de l'ordre de 40% à l'issue de l'opération d'égouttage entre la toile de formation et des feutres (ici ce sont des buvards qui servent de feutres) au moyen d'un rouleau est nécessaire pour détacher la feuille de la toile (étapes 6 et 7). Au cours de ces étapes, la faible concentration de la pâte combinée au brassage par l'air permet d'obtenir une structure homogène, sans formation prononcée d'amas de fibres, et isotrope dans le plan. Dans ce travail, compte tenu du diamètre de la toile de formation, l'utilisation de suspensions fibreuses concentrées à 1.3 g l^{-1} permettent d'obtenir des feuilles dont le grammage est 40 g m^{-2}.

Papiers orientés

Fabriquer des papiers dans le plan desquels les fibres sont orientées selon une direction préférentielle nécessite l'utilisation d'un dispositif spécial appelé la formette dynamique : voir le schéma de la figure 5.6 ainsi que la photographie de la figure 5.8. Le principe de cette machine est de projeter la suspension fibreuse très faiblement concentrée (ici un volume de 15 l de suspension à 0,5 g l^{-1} pour obtenir des feuilles de 40 g m^{-2}) au moyen d'une buse sur un «mur» d'eau formé par la rotation à grande vitesse (800 tr min^{-1}) du tambour de la

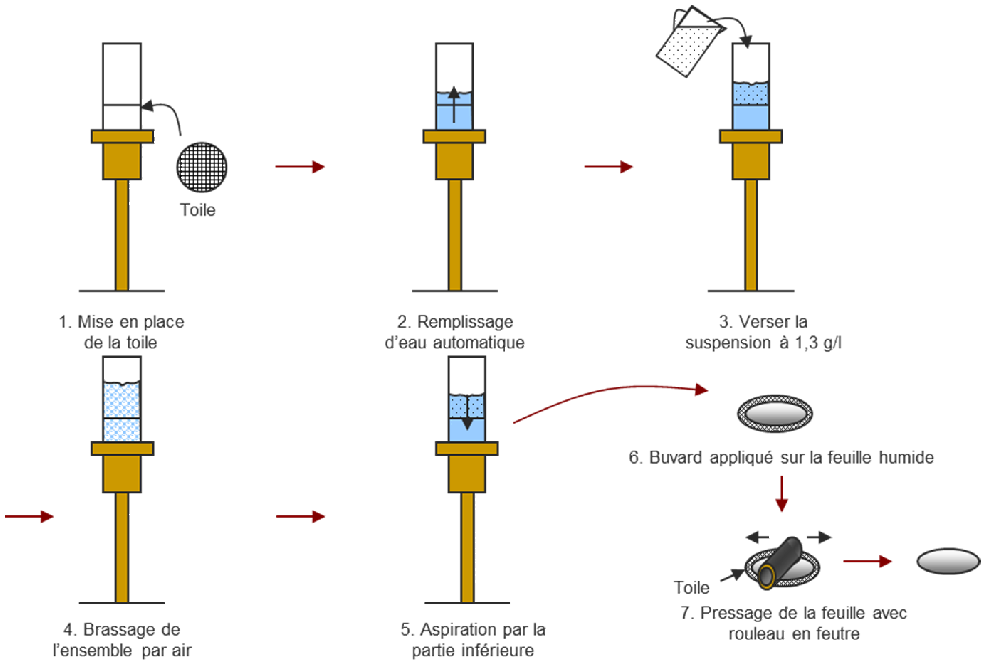


Figure 5.7: Principales étapes permettant la formation du matelas fibreux en utilisant une machine à formettes Frank.

machine. La buse est montée sur un bras qui translate de bas en haut du tambour ce qui permet de former un matelas fibreux humide sur le mur qui est lui-même ensuite aspiré au travers de la toile de formation entraînant le dépôt des fibres sur la toile. La différence de vitesses entre le mur d'eau en rotation et le jet de suspension fibreuse est à l'origine d'un phénomène cisaillement de la suspension fibreuse lorsque celle-ci atteint le mur d'eau, et donc à l'origine de l'orientation préférentielle des fibres. L'intérêt de ce dispositif est qu'il permet la fabrication de papiers dont la structure se rapproche de ceux produits de manière industrielle où il est connu que le procédé à tendance à orienter les fibres dans le sens de fabrication (un phénomène similaire se produit sur les tables de formation des machines à papier industrielles). Cette direction présentant une orientation préférentielle des fibres est appelée dans la suite «Sens Marche» ou «Machine Direction»(SM ou MD) par opposition au «Sens Travers» ou «Cross Direction» (ST ou CD) qui indique la direction perpendiculaire au sens d'avance de la machine à papier. Sur la figure 5.6, nous avons indiqués les paramètres matériau sur lesquels l'opération de formation agit : l'orientation fibreuse et le grammage des papiers produits.
Les feuilles humides obtenues par la formette Frank ou la formette dynamique sont ensuite pressées entre deux buvards pendant 3 min en utilisant une presse équipée de deux plateaux parallèles qui permet de contrôler l'effort normal de compression appliqué (de 0,1 à 0,8 MPa). Cette étape de fabrication agit principalement sur la masse volumique des papiers modèles

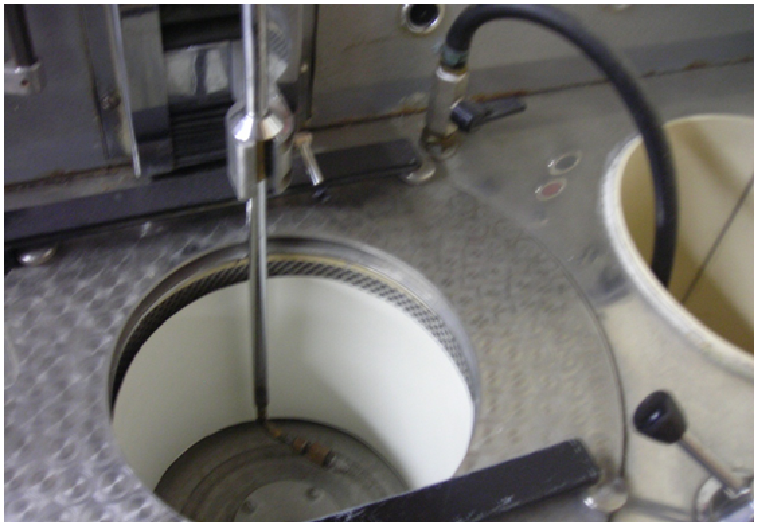


Figure 5.8: Vue du tambour de la formette dynamique et de la buse de projections de la suspension fibreuse.

produits (voir figure 5.6).
Les feuilles après pressage sont enfin séchées de deux façons : séchage «libre» ou séchage «contraint». La première méthode consiste à laisser la feuille sécher à l'air ambiant en la plaçant sur une plaque métallique afin d'éviter qu'elle n'adhère au support. Cette opération permet à la feuille de se déformer librement, ce qui génère des phénomènes de retrait (dans le plan de la feuille environ 1 mm sur un diamètre de 200 mm, du même ordre pour les feuilles dynamiques) ainsi que des phénomènes de déformation hors plan (cloques, ondulations), toutefois assez limités dans le cas de nos échantillons. La seconde technique consiste à utiliser un sécheur plaque (voir figure 5.9) où la feuille est placée pendant 6 min à 85°C. Ce sécheur maintient la feuille contrainte dans le plan (pas de retrait possible du papier au cours de séchage) et hors plan (pas de cloques, ni d'ondulations). Cette méthode induit des contraintes résiduelles complexes (contraintes internes dans les segments de fibres entre liaisons et dans les liaisons elles-mêmes) dans les papiers produits.

5.3 Échantillons de papiers modèles produits

Quelques vues des échantillons obtenus au moyen des dispositifs présentés précédemment sont données sur la figure 5.10. Les fibres colorées donnent un aspect rougeâtre aux papiers produits. L'ensemble des échantillons de papiers modèles utilisés dans la suite de ce travail est regroupé dans le tableau 5.1. Dans ce tableau sont également indiqués les différents types d'études menées dans la suite de ce travail avec les papiers produits.
La porosité apparente ϕ_{app} de ces échantillons y est également indiquée. Celle-ci est calculée

Structure	Contrainte de pressage (MPa)	Type de séchage	Porosité apparente Φ_{app} (%)	Étude des propriétés structurales	Étude des propriétés mécaniques	Étude de l'hygro-expansion	Étude par microtomographie
Isotrope	0,10	libre	77	•	•	•	•
		contraint	73	•	•	•	•
	0,20	libre	71	•	•		
		contraint	67	•	•		
	0,30	libre	73	•	•		
		contraint	68	•	•		
	0,42	libre	68	•	•	•	
		contraint	65	•	•	•	
	0,51	libre	67	•	•	•	•
		contraint	64	•	•	•	•
	0,71	libre	63	•	•		
		contraint	64	•	•		
	0,91	libre	63	•	•		
		contraint	64	•	•		
Orientée	0,11	libre	79	•	•	•	•
		contraint	72	•	•	•	•
	0,42	libre	68	•	•	•	•
		contraint	65	•	•	•	•
	0,71	libre	67	•	•		
		contraint	64	•	•		

Table 5.1: Récapitulatif des échantillons étudiés

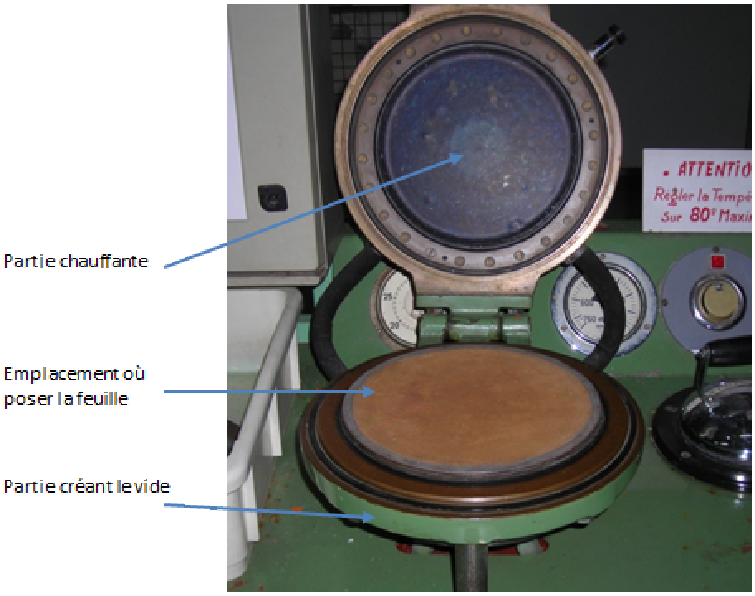


Figure 5.9: Vue du sécheur plaque de la machine à formettes Frank.

à partir de la masse volumique apparente ρ_{app} des papiers par rapport à la masse volumique de la cellulose pure ($\rho_{cellulose} = 1500$ kg m^{-3}), en considérant que les fibres ne sont constituées que de ce seul matériau :

$$\phi_{app} = 1 - \frac{\rho_{app}}{\rho_{cellulose}}. \tag{5.1}$$

L'orientation fibreuse peut être estimée grâce aux fibres colorées incluses dans la structure fibreuse des papiers. Cette méthode de mesure de l'orientation fibreuse consiste à prendre une image grâce à un scanneur des surfaces des feuilles, puis à relever les coordonnées d'un certain nombre de points appartenant aux fibres colorées (Fig. 5.11). Grâce à ces points, il est possible de calculer l'angle entre les vecteurs directeurs de chacun de ces segments et la direction $\boldsymbol{e}_{MD}$. Les angles θ_i des segments identifiés sont utilisés pour construire des fonctions de distribution d'orientation des angles des segments de fibres. L'acquisition des coordonnées des points des fibres s'obtient en utilisant le «plug-in» Point-picker du logiciel ImageJ. Le nombre de points retenus dépend de la morphologie des fibres. Les fibres sont visuellement décomposées en plusieurs brins rectilignes (typiquement 3 à 4) pour décrire au mieux leur forme. Les fonctions de distribution deviennent représentatives (stables) pour environ 2400 relevés de points. La figure 5.12 donne un exemple de fonctions de distribution d'orientation des fibres obtenues respectivement pour des papiers à structure isotrope 2D et orientée dans le plan. Pour le second cas, on remarque l'orientation préférentielle des fibres dans le sens marche (0°) par rapport au sens travers (-90°/90°) montrant l'efficacité

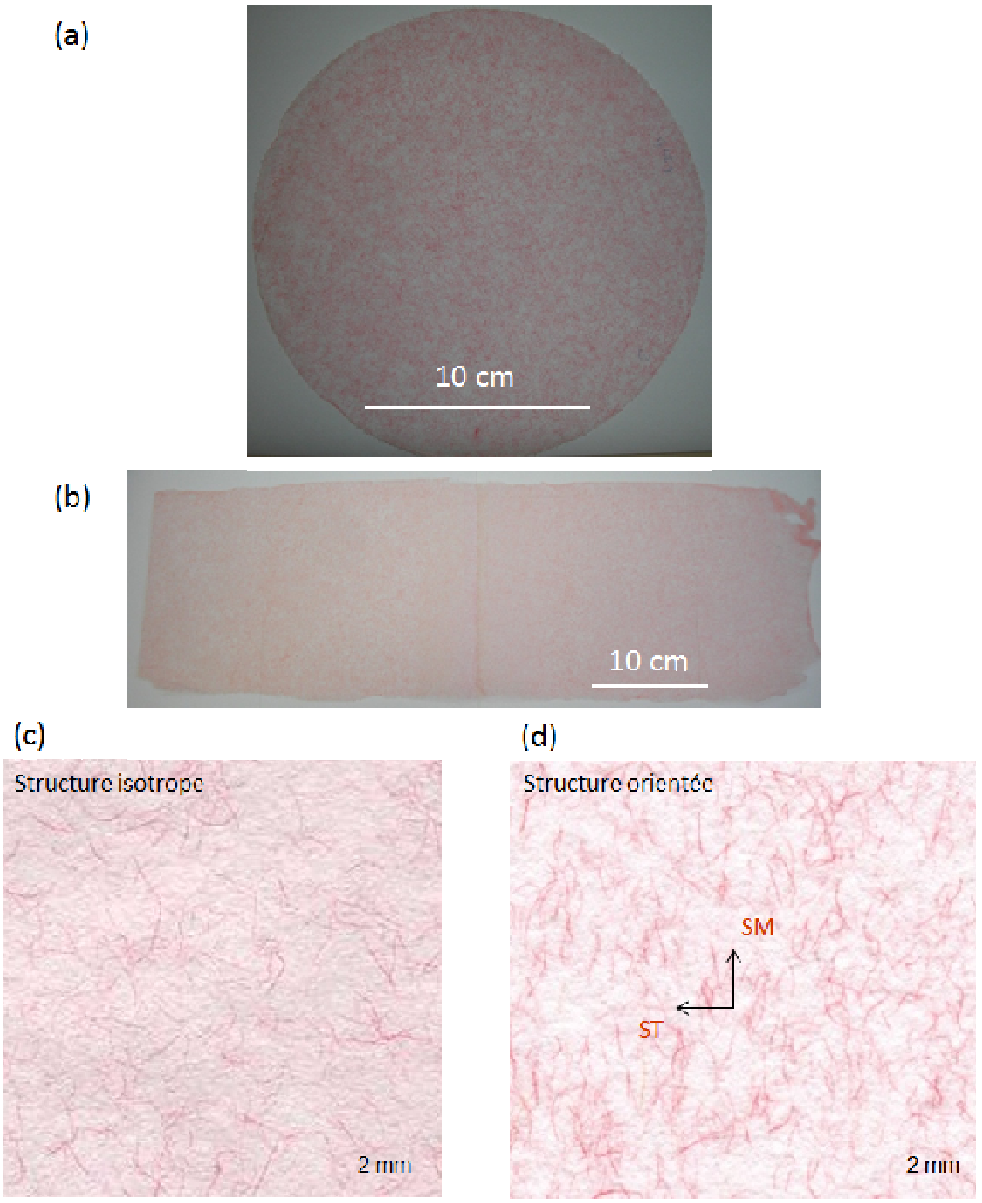


Figure 5.10: Vues de feuilles produites par la formette Frank (a), la formette dynamique (b), zooms sur des feuilles à orientation fibreuse isotrope dans le plan (c) et à orientation préférentielle dans le plan (d).

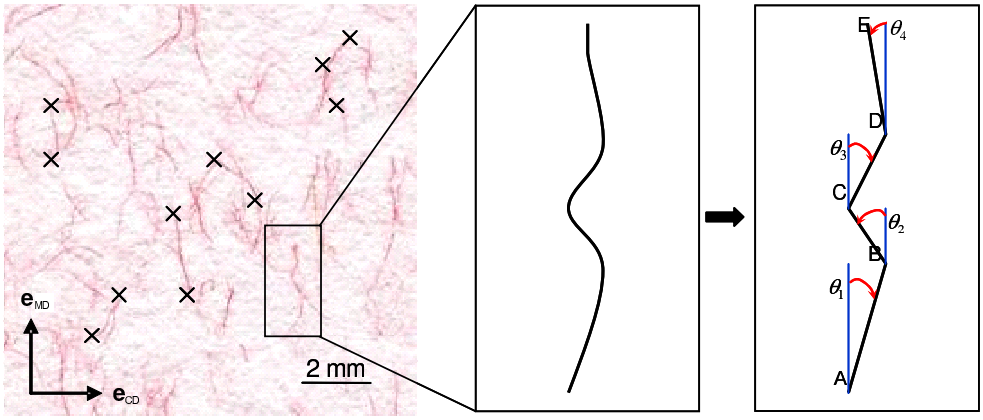


Figure 5.11: Technique d'acquisition des coordonnées des segments de fibres.

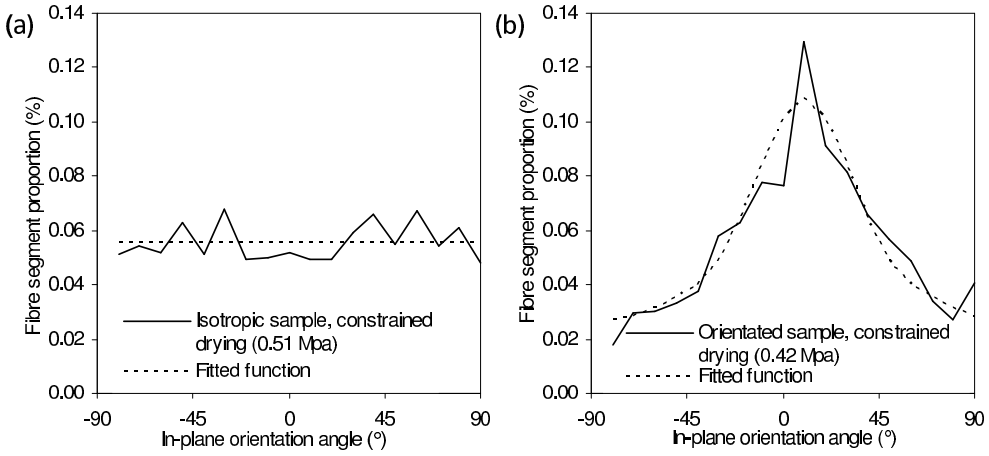


Figure 5.12: Distribution de la proportion du nombre de segments de fibres par classe d'angles pour (a) un papier à structure isotrope dans le plan et (b) pour un papier à structure orientée.

de la formette dynamique. Ces fonctions de distribution de l'orientation des fibres ont été interpolées par une fonction continue elliptique du type :

$$f(\theta) = \frac{1}{\pi}\frac{1-q^2}{1+q^2-2q\cos(2\theta)}. \tag{5.2}$$

où $q = 0$ et $q = 0,33$ respectivement pour les cas isotrope et orienté. Cette fonction respecte la condition de normalisation :

$$\int_0^{\pi} f(\theta)d\theta = 1. \tag{5.3}$$

Afin de rendre visuelles les différences entre les microstructures des papiers produits, nous

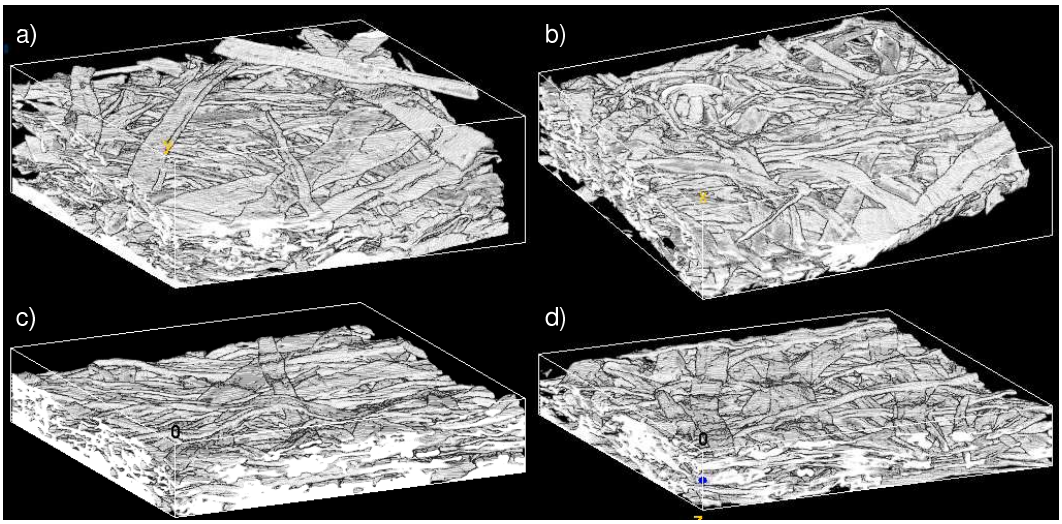


Figure 5.13: Images 3D acquises par microtomographie à rayons X de papiers à sructures isotropes ayant subi des opérations de pressage et séchage différentes : (a) pressage à 0,10 MPa, séchage libre ; (b) pressage à 0,10 MPa, séchage contraint ; (c) pressage à 0,51 MPa, séchage libre ; (d) pressage à 0,51 MPa, séchage contraint. La taille des voxels est 0,7 μm^3 et la dimension de la base des images est 525 μm × 525 μm.

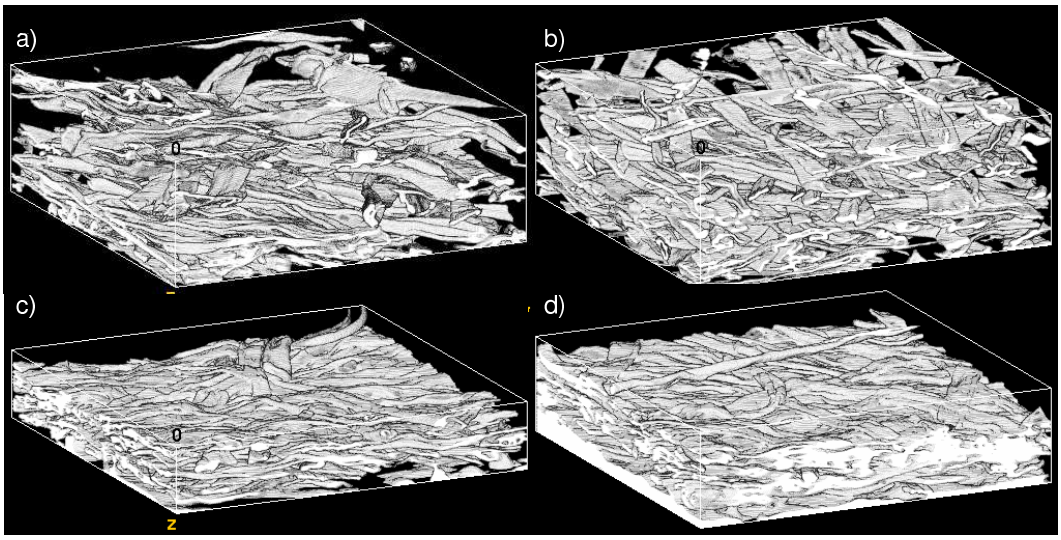


Figure 5.14: Images 3D acquises par microtomographie à rayons X de papiers à structures orientées dans le plan ayant subi des opérations de pressage et séchage différents : (a) pressage à 0,11 MPa, séchage libre ; (b) pressage à 0,11 MPa, séchage contraint ; (c) pressage à 0,42 MPa, séchage libre ; (d) pressage à 0,42 MPa, séchage contraint. La taille des voxels est 0,7 μm^3 et la dimension de la base des images est 525 μm × 525 μm.

donnons également un ensemble d'images 3D des papiers modèles produits obtenues par microtomographie à rayons X dans les figures 5.13 et 5.14.

5.4 Observations 3D des microstructures

Toutes les images 3D des papiers modèles présentées dans la suite de ce travail ont d'ailleurs été obtenues sur cette ligne de microtomographie à rayons X de l'ESRF dans le cadre du projet *Heterogeneous Fibrous Materials* (conditions d'acquisition des images : énergie du faisceau monochromatique de 20 keV, acquisition de 1500 images sur un secteur angulaire de 180°, détecteur radiographique de 2048 × 2048 pixels, temps de scan de l'ordre de 10 min). Les échantillons imagés avaient des dimensions de l'ordre de 1,4 mm × 1,4 mm dans le plan. Les reconstructions des images 3D des échantillons ont été effectuées soit en mode classique d'absorption, soit dans un mode de reconstruction dit Paganin (ce mode étant devenu disponible à la fin de la thèse) beaucoup plus performant que le précédent et basé sur l'analyse du contraste de phase des images. Dans toutes les images reconstruites des papiers (hormis les images des fibres présentées précédemment), la taille des voxels (pixel en trois dimensions) est 0,7 × 0,7 × 0,7 μm^3.
Les images en niveaux de gris sont initialement codées sur 32 octets, puis, pour les rendre manipulables, recadrées sur 8 octets. Les images sont ensuite filtrées en appliquant un filtre de type médian et ensuite segmentées (c'est-à-dire binarisées) :

- Pour les images reconstruites en mode d'absorption, la première technique de segmentation consiste à placer un seuil sur l'histogramme des niveaux de gris. Au-dessous de ce seuil, un voxel noir représente la phase poreuse et au-dessus de ce seuil, un voxel blanc représente la phase fibreuse. Cette méthode de segmentation n'est efficace que dans le cas de papiers à masse volumique faible (inférieure à 400 kg.m^{-3}). Au-delà de cette limite, les réseaux fibreux deviennent trop denses et on observe des niveaux de gris similaires à la fois dans les phases fibreuses et poreuses rendant la technique de seuillage inefficace. La seconde méthode de segmentation utilise un algorithme de croissances de zones blanches mis au point par Rolland du Roscoat.

- Le mode de reconstruction Paganin facilite la segmentation en améliorant notablement la qualité des histogrammes des niveaux de gris. Avec ce mode d'imagerie, un simple seuillage est suffisant pour séparer la phase fibreuse de la phase poreuse dans tous nos échantillons. Les images des figures 5.13 et 5.14 ont été obtenues par cette technique.

Partie III

Analyse des microstructures fibreuses à l'échelle des fibres et des liaisons

Chapitre 6

Towards 3D analysis of the links between processing conditions, structural and mechanical properties of pulp fibre networks

Ce chapitre est basé sur un article paru en 2012, C. Marulier, P.J.J. Dumont, L. Orgéas, D. Caillerie, S. Rolland du Roscoat, «Towards 3D analysis of the links between processing conditions, structural and mechanical properties of pulp fibre networks», *Nordic Pulp and Paper Research Journal*, vol. 28, n^{o}2, p. 245-255.

Résumé

En utilisant l'imagerie par microtomographie synchrotron à rayons X, ce travail vise à proposer une méthode d'analyse pour obtenir des informations 3D sur les microstructures fibreuses de papier. Cette technique permet de mieux comprendre les liens entre les conditions de fabrication et les propriétés microstructurales et mécaniques des réseaux de fibres enchevêtrées, ainsi que la morphologie des fibres et des liaisons entre fibres. L'utilisation de cette analyse 3D est appliquée à des papiers modèles produits selon des conditions de pressage humide différentes. Ce travail montre que l'analyse d'images permet de suivre l'évolution des paramètres décrivant, par exemple, la forme et l'inclinaison des sections des fibres, l'aire des liaisons, la distance entre les liaisons, en fonction des conditions de fabrication, et cela sur un grand nombre de fibres et de liaisons. Les distributions de propriétés stabilisées tirées de cette analyse expérimentale permettent d'alimenter des modélisations mécaniques ou

physiques par approche discrète.

Abstract

By using X-ray synchrotron microtomography imaging, this work aims at proposing a method to get 3D information on paper fibrous microstructures. Such technique is useful to better understand of the links between the manufacturing conditions, the resulting microstructural, and the mechanical properties of the paper fibrous networks, together with the morphology of fibres and fibre-fibre bonds. Its usefulness is illustrated for the 3D analysis of model papers being produced by changing the wet pressing conditions. It is demonstrated that the image analysis allows the changes of parameters describing the fibre cross section shape and inclination, the bond area surfaces, the distance between bonds, for example, to be followed with respect to the applied processing conditions for a large set of fibres and bonds. The distributions of properties that can be drawn from this experimental analysis will allow mechanical or physical discrete modelling approaches for papers to be enriched.

6.1 Introduction

Papermaking conditions (forming, pressing and drying) govern the architecture of the resulting pulp fibre networks, the complex morphology [1] and the states of residual stresses in fibres and fibre-fibre bonds [16].
Recently, several microscopic techniques (optical microscopy, Scanning Electron Microscopy (SEM), Environmental Scanning Electron Microscopy (ESEM), Transmission Electron Microscopy (TEM), Fluorescence Resonance Energy Transfer (FRET) microscopy, confocal laser scanning microscopy) have been used to estimate some very important microstructure descriptors such as the fibre-fibre bond surface [29, 8, 42, 43, 44, 45, 19, 20, 21], the fibre width, thickness or wall properties [29, 19, 9, 49], the number of bonds between fibres [7]. A first group of studies focuses on the analysis of single fibre-fibre bonds prepared in conditions that were far from the usual paper processing conditions [42, 45, 43, 44, 19, 20, 21]. A second group tried to extract such microstructural descriptors directly form the image analysis of fibrous networks processed following more classical papermaking conditions [19, 14, 20]. These approaches are very interesting because they can potentially highlight the influence of the network structure on the fibres and fibre-fibre bonds during papermaking unit operations. However, these methods are destructive (as the tested specimens can only be used once) and may be time consuming. They also present difficulties to extract 3D information because the data are extracted from 2D views or 2D projections or very low depth of field 3D images. Lastly, if many descriptors were measured in these studies, the description of the fibre-fibre bonds should be improved.

To overcome this problem, X-ray microtomography appears as a very powerful microstructure analysis method [5, 33, 22, 36, 28, 31, 2]. Huge progress in imaging paper-like materials have been recently made as exemplified by the progression that can be observed from the pioneering work of Samuelsen et al. [37, 38] and Antoine et al. [2] up to the most recent studies [33, 17, 34, 35, 4, 10, 48]. Microtomography images can be used to perform relevant structural analysis so as to determine the porous properties of such fibrous materials [34], the ink-paper or liquid interaction [47, 23], or to support the determination of physical paper parameters such those related to their permeability [22], thermal [35], or hygroexpansion properties [48] when the acquired images are coupled to numerical simulation softwares/digital image correlation techniques.
However, to date, the microstructure analyses have only focused on global fibrous network properties (porosity, specific surface, *etc.*). The analysis of the morphology properties of individual components such as the fibre or bond geometries has not yet been undertaken using such types of images. When considering network or particle models [18, 16, 41, 3, 26] to predict the physical, and especially the mechanical, properties of pulp fibre networks, information about the morphology or the physical properties of fibres and bonds is paramount. But it remains extremely difficult to perform relevant multiscale analyses because those properties are not easily accessible *ex situ* and are obviously much more difficult to obtain *in situ*. Therefore this work first aims at proposing an analysis method to get accurate and 3D information on the paper fibrous networks for different manufacturing conditions. This work also aims at interpreting the microstructure changes regarding the process and to briefly relate the latter to the changes of the paper mechanical properties. Such method is based on a fine analysis of images acquired by X-ray synchrotron microtomography of model papers fabricated using classified pulp fibres and varying pressing conditions.
In a first section, the pulp fibres and the processing conditions to obtain model papers are given. The X-ray synchrotron microtomography imaging technique and the image analysis treatments to improve the image quality are also explained. Finally, the mechanical performed tests are described. In a second section, the way the fibre network microstructure parameters are determined at the network and fibre or fibre-fibre bond scales are detailed. The influence of pressing conditions at the macroscopic and lower relevant scales are then presented. Finally, the relevance and the novelty of the obtained microstructural observations is discussed by comparison with data obtained in the literature for similar types of analysis utilising classical observation techniques. Furthermore, the interest of the observed tendencies for mechanical discrete models of pulp fibre networks is briefly discussed.

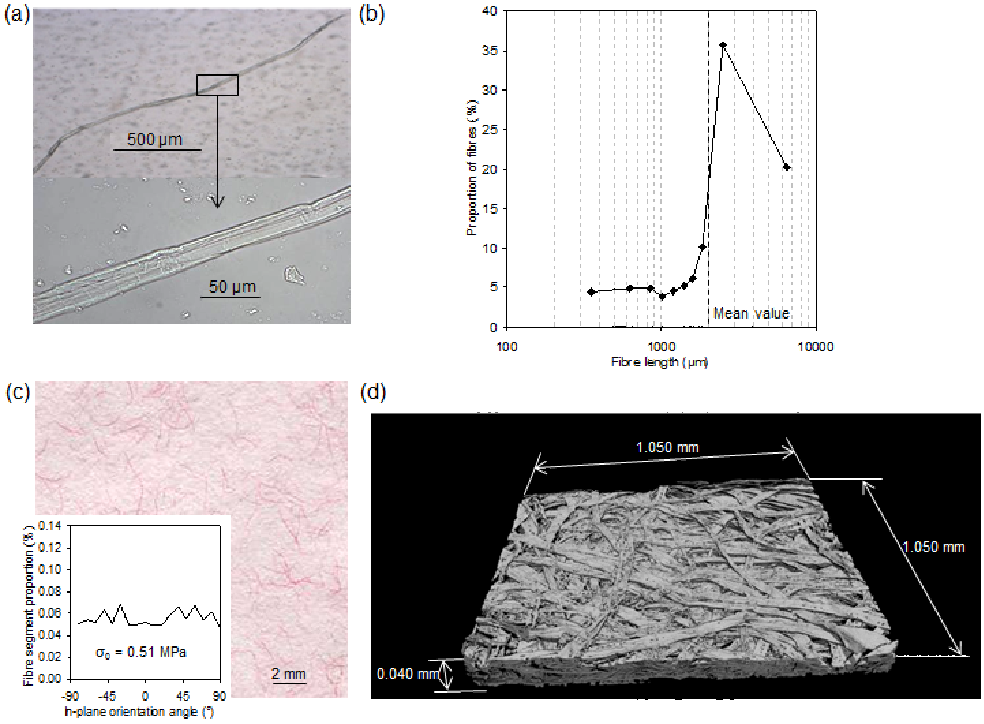


Figure 6.1: (a) 2D optical micrograph of the studied maritime pine pulp fibres. (b) Length distribution of tested maritime pine pulp fibres after the screening operation. (c) Upper picture of a model paper (σ_0 = 0.51 MPa, some of the fibres were previously dyed in order to assess the spacial distribution of fibres together with their orientation, see the graph onto the picture). (d) 3D reconstruction obtained by X-ray microtomography (ESRF, beamline ID 19) of an isotropic paper wet pressed at σ_0 = 0.51 MPa.

6.2 Materials and experimental procedure

6.2.1 Fibres

The raw material used for the model papers was a bleached softwood pulp from maritime pine. No beating operation was carried out to avoid damage phenomena such as cutting effects or fibrillation of the single fibre structures. In its initial state, this pulp contained a significant amount of fibres longer than 2 mm: see Fig. 7.1(a). Further, a screening operation (Bauer Mac Nett device) was performed to remove particles smaller than 0.5 mm. Such operation was performed to obtain fibrous networks where the fibrous elements have simple geometries and calibrated sizes. The length of the pulp fibres given in Fig. 7.1(b) was measured using the MOrFI device (Techpap, Grenoble, France).

6.2.2 Model papers processing

Paper handsheets having a targeted basis weight of 40 g m^{-2} and an in-plane isotropic structure were produced using a Rapid Köthen former (Karl Frank GMBH, Weinheim, Germany). The non-preferential orientation of the fibres in the midplane of the sheet was controlled after the formation operation: see Fig. 7.1(c) where a typical fibre orientation distribution is depicted for those materials where 0.5% of the pulp fibres were red dyed to perform this measurement. The wet handsheets were then pressed between blotters for 3 min using a press equipped with two parallel plates that could control the normal applied compression stress σ_0. This latter was respectively set to 0.10 MPa, 0.51 MPa and 0.91 MPa so as to adjust the density of the produced papers [13].
After pressing, the handsheets were finally dried with in-plane constrained conditions in the Rapid Köthen machine drying system for 6 min at 85°C. It was checked that the handsheets did not exhibit after drying any in-plane shrinkage and any out-of-plane deformations such as curl or cockles. Such constrained drying conditions are known to induce residual stresses inside the free fibre segments located between two bonds, but also in the fibre-fibre bonds [16].

6.2.3 Microstructure imaging

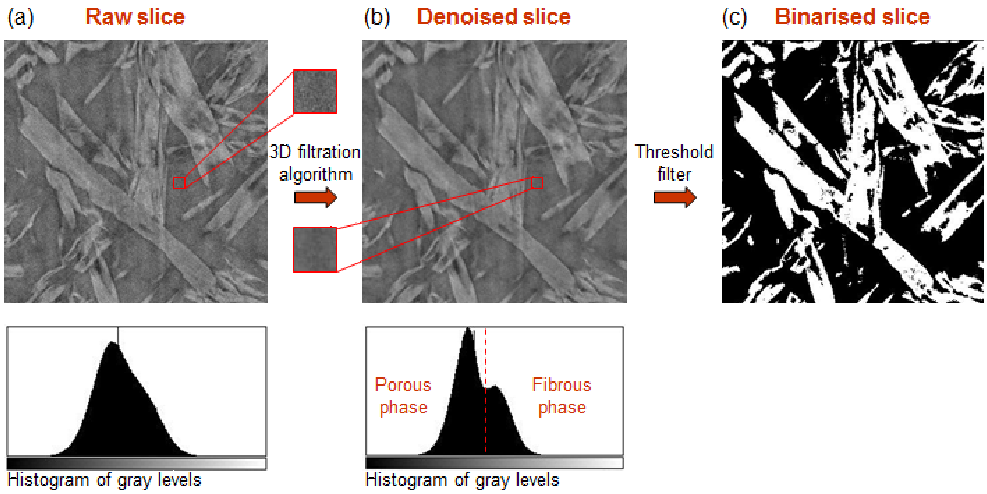


Figure 6.2: Method used to extract 3D segmented images of the fibrous microstructures from the 3D grayscale images acquired with the X-ray microtomograph.

X-ray microtomography was performed at the European Synchrotron Radiation Facility (ESRF, ID19 beamline, Grenoble, France) to perform 3D characterisation of the fibrous microstructures of the produced papers. Fast scans (overall scanning time ≈ 5 min) of small paper specimens of dimensions ≈ 1.4 mm × 1.4 mm × t mm, where t is the thickness of the paper,

extracted from the produced sheets were achieved. The scans consisted of acquiring 1500 X-ray 2D radiographs onto a CCD detector (spatial resolution 2048 × 2048 pixels) obtained from the incremental rotation of the imaged sample with respect to the synchrotron X-ray monochromatic source (overall rotation = 180°, X-ray energy = 17.6 ± 0.2 keV). The combination of the CDD detector and the optics allows a pixel size of 0.7 μm to be obtained. Then, the 2D radiographs are filtered to remove ring artefacts. This new set of radiographs becomes the input of the filter back projection algorithm that provides the 3D data sets, i.e. a cylindrical volume of $\pi d^2 t/4$ (d = 1.4 mm). We therefore obtained 3D maps of the X-ray absorption coefficient within each scanned specimen could be obtained. A reconstructed image of the cross section of a typical specimen is given in Fig. 6.2(a). To obtain quantitative structural parameters, the two main phases of the paper specimens, *i.e.* the pore phase and the solid fibrous phase were segmented. Due to the rather poor absorption contrast between these two phases, a special procedure was required for that purpose. A preliminary step consisted of denoising the data to enhance the segmentation (see in Fig. 6.2(b) the denoised image of the previously displayed specimen cross section). The used denoising algorithm is based on a nonlinear anisotropic diffusion filter [33, 32]. Then the segmentation lied on a seeded region growing method based on voxel aggregation [33]. Fig. 6.2(c) shows the resulting segmented cross section. This process was performed using volumes of 1.05 mm × 1.05 mm × t mm, corresponding to parallelepiped contained in the reconstructed cylindrical volume. As an example, Fig. 7.1(d) shows a 3D example of a reconstructed and segmented fibrous networks wet pressed at σ_0 = 0.51 MPa.

6.2.4 Basic structural and mechanical properties

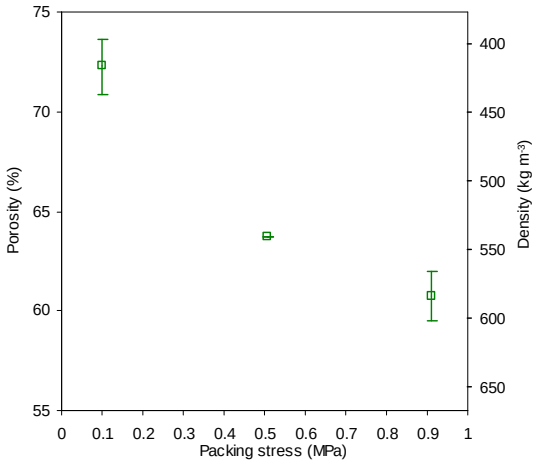


Figure 6.3: Porosity ϕ_{app} and corresponding density ρ_{app} of model papers (HR=50 %) as a function of the packing stress. Porosity data are averaged over five test results for each paper type. The minimum and maximum values are used to show the scatter of the measurements.

Packing stress σ_0 (MPa)	0.10	0.51	0.91
Average apparent porosity ϕ_{app} (%)	73	64	61
X-ray measured porosity ϕ_X (%)	86	73	-

Table 6.1: Porosity of model papers (HR = 50%) with respect to the wet pressing stresses determined using a standard determination technique ϕ_{app} and direct measurements on X-ray imaged specimens ϕ_X.

Basic structural properties (thickness, basis weight, porosity) were then measured for each handsheet after processing and storage in environmentally controlled rooms (T=23°C and 50 % RH) to estimate the paper apparent density ρ_{app}. The apparent porosity ϕ_{app} of papers were also estimated from ρ_{app} and from the density of pure cellulose $\rho_{cellulose}$ taken equal to 1500 kg m^{-3}, and considering that fibres were only composed of cellulose.

$$\phi_{app} = 1 - \frac{\rho_{app}}{\rho_{cellulose}}. \tag{6.1}$$

The porosity of model papers decreases from 73% to 61% as the packing stress increases from 0.10 MPa to 0.91 MPa (Fig. 6.3) during wet pressing: see Fig. 6.3 where the corresponding apparent densities are also indicated. The decrease of porosity when changing the packing stress from 0.10 MPa to 0.51 MPa is comparatively higher (decrease of 12%) than when increasing the packing stress from 0.51 MPa to 0.91 (change of 4%). Such limited consolidation which tends to stabilise at high packing stress is classically observed during wet pressing of papers [12, 13].

Note that the porosity of the model papers was also be calculated using the segmented X-ray microtomography volumes. In that case, the porosity ϕ_X of the scanned specimens was estimated as the ratio between the sum of the black voxels (*i.e.* the volume occupied by the pores) and the sum of all voxels (*i.e.* the volume of the imaged specimens). Corresponding results are gathered in Tab. 6.1 together with those measured with the standard method. ϕ_{app} and ϕ_X follow the same trends, *i.e.* a decrease with the packing stress σ_0. Nevertheless, for the same value of σ_0, ϕ_{app} and ϕ_X differ so that $\phi_X > \phi_{app}$. Such a mismatch can be explained by the differences in both measurement techniques: the standard method used to estimate ϕ_{app} led to slightly pack paper specimens when measuring their thickness, whereas this was not the case when using the X-ray images of the paper specimens. Please note that in the following, the indicated porosity (or the corresponding density) are those measured using the standard method.

The mechanical properties of model papers were studied by using a commercial horizontal tensile testing device (Lorentzen & Wettre No. 162, tensile tester) that was installed in an air conditioned room (T = 23°C, RH = 50 %). To achieve the tests, paper strips having a gauge length of 100 mm (*i.e.* length between jaws), and a gauge width of 15 mm were cut from the sheets. The Young's modulus E and the breaking stress σ_u could thus be obtained for each

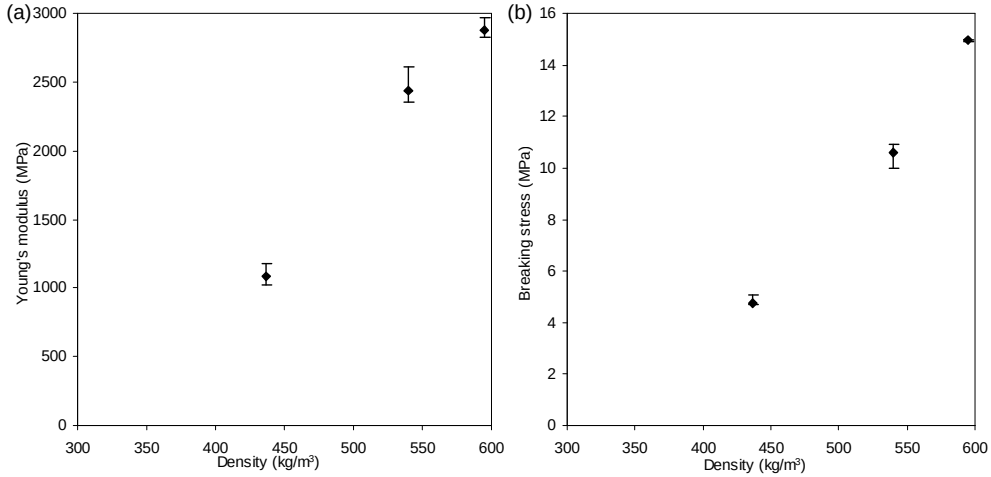


Figure 6.4: (a) Young's modulus and (b) breaking stress of model papers (HR=50 %) as a function of the apparent density of model isotropic papers. Mechanical data are averaged over five test results for each paper type. The minimum and maximum values are used to show the scatter of the measurements.

specimen. As shown in Figs. 6.4, increasing the density of the sample has a predominant effect on increasing both the Young's modulus and the breaking stress of tested model papers. The Young's modulus, resp. the breaking stress, increases from 1050 MPa to 2900 MPa, resp. from 4.7 MPa to 15.1 MPa, as the apparent density increases from 440 kg m^{-3} to 595 kg m^{-3}. Furthermore, there exists a critical (or threshold) density that can be extrapolated equal to 350-400 kg m^{-3} following linear fits of both data shown in the two previous graphs. At this density value, fibres would not create an interconnected fibrous network and therefore the Young's modulus and the breaking stress would be equal to zero.

6.3 Geometry of fibres and fibre-fibre bonds

To get quantitative data on the fibrous microstructures, *i.e.* the fibrous and fibre bond geometries, additional image analysis operations were achieved directly from the binarised images using the software ImageJ ("Pointpicker" plugin). To get such information at the microscopic scale using image analysis standard and automatic algorithms was impossible because of the complexity of the studied microstructures. Then, similarly to some previous studies [22, 21, 2], a manual approach using grayscale images was adopted. The operations are briefly described below and summarised in Fig. 7.3. They were performed on two scanned volumes pressed at 0.10 MPa and 0.51 MPa.

Characterisation of the fibre centrelines - Determining the centreline of a considered fibre in the microtomography images was carried out by manually picking the centres of mass of

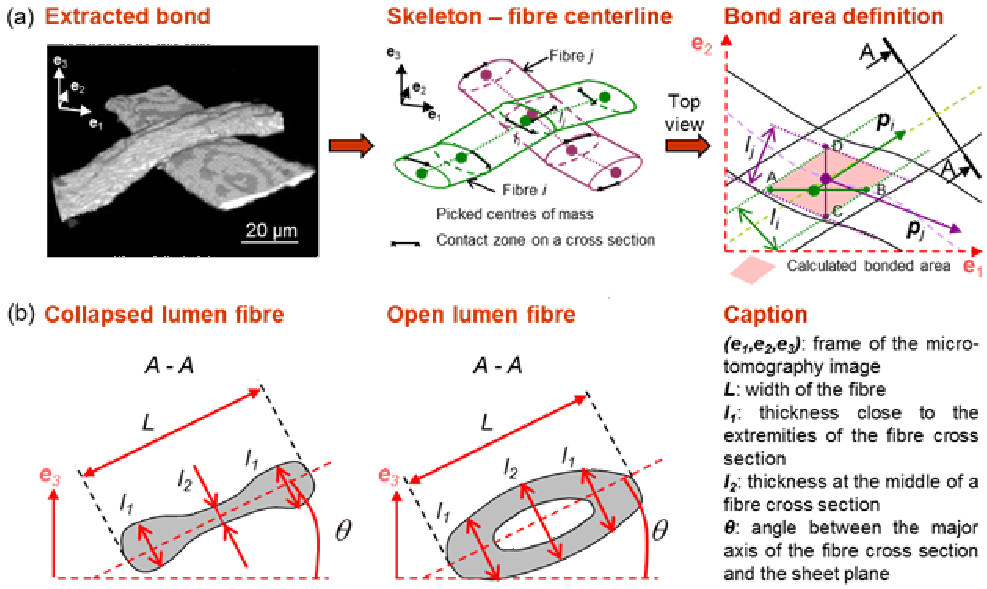


Figure 6.5: (a) 3D micrograph of a fibre-fibre bond between two contacting fibres extracted from a X-ray microtomography image of a model paper. From such image, the fibre centrelines were determined and the bond surface was calculated. (b) Schematic view of a fibre cross section having a collapsed or an open lumen and principle of determination of the fibre cross section dimensions and of their inclination angle θ.

several cross sections of this fibre parallel to the $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_3)$ or $(\boldsymbol{e}_2, \boldsymbol{e}_3)$ planes of the microtomography image frame within bond zones (one picked point per fibre per bond zone) as shown in Fig. 7.3(a). The points on the centrelines were chosen so that the extremities of the vectors $\boldsymbol{AB}$ or $\boldsymbol{CD}$ represented in Fig. 7.3(a) corresponded to the widest projected dimensions of the bond on the unit vectors $\boldsymbol{e}_1$ and $\boldsymbol{e}_2$ of the microtomography frame, respectively. From two picked points on the centreline of the considered fibre i, a local unit tangent vector $\boldsymbol{p}_i$ was defined as illustrated in Fig. 7.3(a).

Characterisation of the fibre cross section morphology - To get estimates of the morphology of the fibre cross section, the coordinates of some particular points belonging to the normal cross sections to the centreline of the considered fibre were measured in order to obtain the principal dimensions of the fibre cross sections: the width L and the thicknesses l_1 and l_2 that are displayed in Fig. 7.3(b). Two kinds of thicknesses were distinguished as exemplified in Fig. 7.3(b): l_2 was measured in the middle of the fibre cross section, whereas l_1 was measured close to the extremities of the fibre cross section. More precisely, l_1 was measured at a distance roughly equal to $L/6$ from the extremities if the lumen of the fibre was open in the investigated cross section, whereas it corresponded to the maximum thickness of the fibre cross section if the fibre lumen was collapsed as shown in Fig. 7.3(b). This enabled to get the maximum thickness of the section whatever its shape.

Furthermore, as shown in figure 7.3(b), the major axes of the cross section of the considered fibre was not necessarily lying within the $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ plane of the microtomography frame. To estimate the inclination of each investigated fibre cross section, the angle θ between the major axis cross section of the fibre and the plane $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$, see Fig. 7.3(b), was thus measured. This inclination angle is similar to the so-called "twist" angle in [14].
To obtain statistical representative distributions of those parameters, at least arbitrary 120 measurements of each of them were performed within a scanned volume. All the fibres contained in several sub-volumes were characterized. Such procedure was followed to avoid analysing fibres having a prominent geometry. Doing so, the shapes of the corresponding distribution functions were shown to become stable for such numbers of measurements. The interval size for plotting frequency distributions is set to 5 μm for L, to 1 μm for l_1 and l_2, and for 5° for θ.

Characterisation of bonds - The various shapes of the cross sections (open or closed lumen) prevented the use of an automatic detection as it has been done by Malmberg et al. [28]. By following the centreline of the considered fibre of the model paper network, it was further possible to detect the positions of its bonds with its neighbouring fibres. The centres of the bonds were determined by the curvilinear abscissae s_i measured along the fibre centreline. Following this procedure, it was possible to obtain the distance Δs between the centre of two consecutive bonds i and $i+1$ along the fibre (this parameter is also called the free fibre length by He *et al.* [20]):

$$\Delta s = s_{i+1} - s_i. \tag{6.2}$$

The general aspect of the major part of bonds is represented in Fig. 7.3(a). As the fibres were quite flat, the bond area surface S between two contacting fibres i and j could be roughly estimated as equivalent to that of a parallelogram (see the right scheme in Fig. 7.3(a)). In most cases, the dimensions of the bonds are not as large as the contacting fibre widths. Therefore, to get a good estimate of the bond area surface, the widths l_i and l_j of the bonds first have to be calculated: see Fig. 7.3(a). Nonetheless, determining directly l_i and l_j from a microtomography image is not easy as any rotation of the image that could allow a direct visualization of the cross section of each fibre in the vicinity of a bond could induce a decrease of its resolution. Therefore, the adopted measurement technique did not require the studied images to be rotated. It was preferably chosen to visually pick the extremities of the vectors $\boldsymbol{AB}$ or $\boldsymbol{CD}$ represented in Fig. 7.3(a) which respectively correspond to the widest projected dimensions of the bond on the unit vectors $\boldsymbol{e}_1$ and $\boldsymbol{e}_2$ of the microtomography frame. Knowing these vectors and the tangent vector $\boldsymbol{p}_i$, resp. $\boldsymbol{p}_j$, to the centreline of the fibre i, resp. j, it was possible to calculate $l_i = \|\boldsymbol{AB} \times \boldsymbol{p}_i\|$, resp. $l_j = \|\boldsymbol{CD} \times \boldsymbol{p}_j\|$, and finally to obtain the bond surface S

Packing stress (MPa)	0.10	0.51
Mean width $\langle L \rangle$ (μm)	30.6	36.1
Standard deviation σ_L (μm)	8.6	9.8
$\sigma_L / \langle L \rangle$	28%	27%
Mean thickness $\langle l_1 \rangle$ (μm)	6.8	6.3
Standard deviation σ_{l_1} (μm)	2.0	1.8
$\sigma_{l_1} / \langle l_1 \rangle$	29%	29%
Mean thickness $\langle l_2 \rangle$ (μm)	6.1	4.5
Standard deviation σ_{l_2} (μm)	2.4	1.3
$\sigma_{l_2} / \langle l_2 \rangle$	39%	29%
Mean inclination angle $\langle \theta \rangle$ (°)	-1.76	0.02
Standard deviation σ_θ (°)	23.4	14.1

Table 6.2: Mean width $\langle L \rangle$, thickness $\langle l_1 \rangle$, thickness $\langle l_2 \rangle$, and inclination angle $\langle \theta \rangle$ of fibre cross sections for various pressing conditions, and related standard deviations of such parameters, respectively σ_L, σ_{l_1}, σ_{l_2} and σ_θ.

between two contacting fibres as follows:

$$S = \frac{l_i l_j}{\| \boldsymbol{p}_i \times \boldsymbol{p}_j \|}. \tag{6.3}$$

Practically, it was possible to assess the surface of about 80 bonds per specimen to build bond area surface distribution functions. The interval size for plotting frequency distributions is set to 5 μm for Δs and for 50 μm^2 for S.

Characterisation of the bonding degree ratio between fibres - For each bond i along a given fibre, the ratio l_i / L between the bond width l_i and the fibre width L was calculated. This measure can be considered as assessing the "degree" of bonding: a ratio of 1 stands for a full contact and a lower ratio stands for a partial contact for the studied fibre. Here the interval size is set to 5%.

6.4 Results

6.4.1 Influence of the wet pressing on the fibre cross section geometry and inclination

Fig. 6.6(a) shows the fibre width distribution for two pressing conditions. It clearly appears that the fibre width distribution is shifted towards higher values for the high pressing of 0.51 MPa compared to the low pressing of 0.10 MPa. This is also illustrated by the calculated mean width values presented in Tab. 7.2 which increase from 18% between the two packing stresses. A slightly larger standard deviation of the width distribution σ_L is also observed in Tab. 7.2

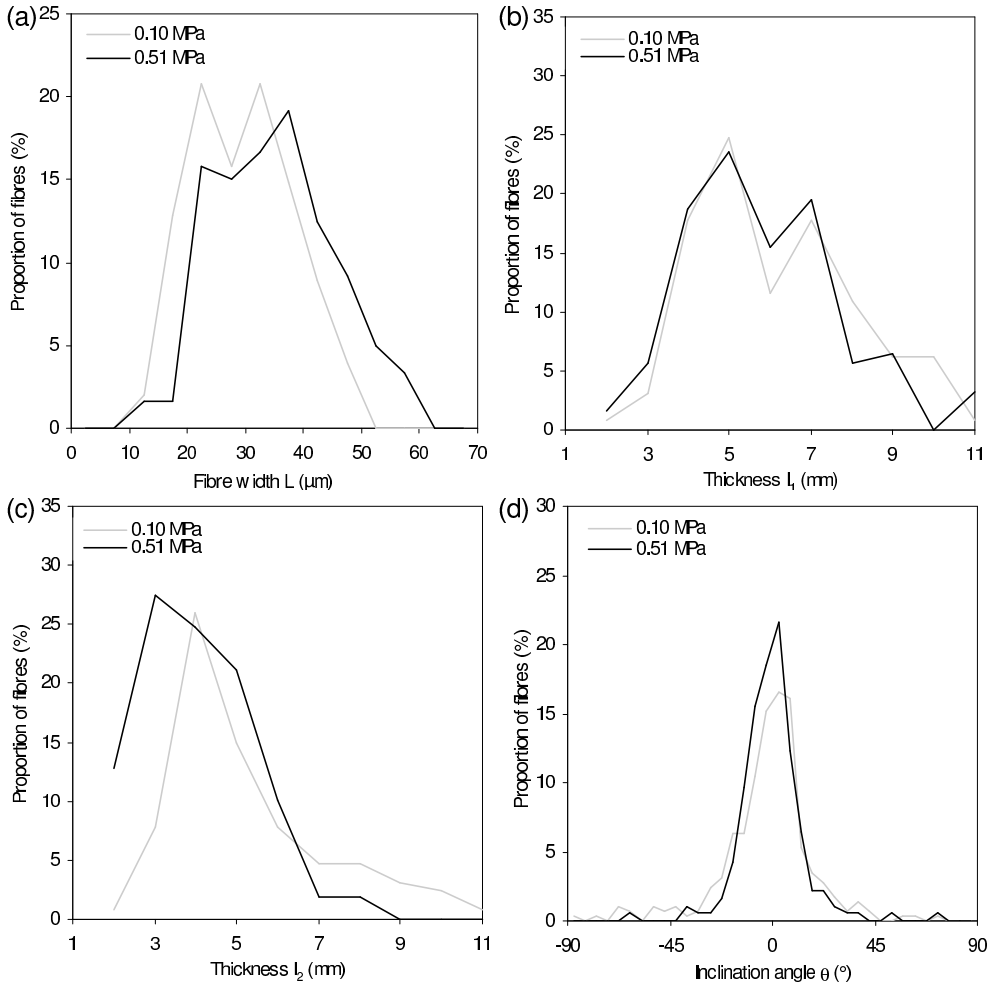


Figure 6.6: Distributions of the fibre (a) width L, (b) thickness l_1, (c) thickness l_2, and (d) distribution of the inclination angle θ of the fibre cross sections for two pressing conditions.

for the high pressing compared to the low pressing showing that such operation induces a more pronounced heterogeneity of this geometrical property. This results in ratios of the standard deviation of the width to the mean width $\langle L \rangle$ which are quite similar in both pressing conditions (see Tab. 7.2). Thus, the heterogeneity of the fibre width in those papers does not appear to be importantly affected by the wet pressing.

Fig. 6.6(b) illustrates that there is no clear difference on the distribution of the thickness l_1 of the fibre cross sections induced by the pressing on this parameter, which is confirmed by the mean values $\langle l_1 \rangle$ and the standard deviations σ_{l_1}, as well as by the ratio of these two latter parameters given in Tab. 7.2. However, the packing stress tends to decrease the thickness l_2 of the fibres as revealed in Fig. 6.6(c) and in Tab. 7.2. A diminution of 34% of the mean values of this thickness parameter is observed between the low and high pressing conditions.

The ratios of the standard deviation σ_{l_2} to the mean value $\langle l_2 \rangle$ is also much greater in the low pressing case than in the strong pressing case, thus showing a decrease of the heterogeneity of this geometrical property.
The evolution of the three previous geometrical parameters show the morphological changes of the fibre cross sections occurring during wet pressing. In all pressing conditions, the fibre cross sections were uncollapsed (open lumen), partially or fully collapsed. This is shown by comparing the width L with l_1 or l_2. L is mainly greater than l_1 or l_2. Visually, fibres of papers that were low pressed did not exhibit a dominant cross section shape: uncollapsed, partially or fully collapsed cross sections were present. In the case of papers that were more pressed, the fibre cross sections appeared more often fully collapsed. This corroborates the measured evolution for the ratios of the standard deviation to the mean value of l_2 between the two pressing conditions. Then, the greater the packing stress the more the shape of the cross section of the fibres is homogenised and the more the cross section collapses at their centre. The relatively low change of l_1 could be related to a limited change of the fibre cross section curvature at its extremities.
Fig. 6.6(d) shows the distribution of the inclination angle θ between the major axis of the fibre section and the plane of the sheet. It shows that the major axis is mostly parallel to the plane of the sheet. The mean values $\langle \theta \rangle$ for both pressing conditions are not equal to zero (see Fig. 6.6(d) and Tab. 7.2). This might be due to an inclination of the main plane of the paper specimen with respect to the X-ray microtomography $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ frame that was very limited. More interestingly, note that the angle distributions shown in Fig. 6.6(d) for both pressing conditions are quite symmetric with respect to the mean values of θ. This shows that there is no preferred inclination of the fibre cross sections in such paper specimens. However, the peak of the distribution is higher in the case of the high pressing compared to the low pressing (see also the diminution of the standard deviation of θ in Tab. 7.2). The packing stress σ_0 thus tends to reduce the inclination angle of the fibre cross sections the main axes of which being more parallel to the main plane of the specimens when increasing the wet pressing.

6.4.2 Influence of the wet pressing on the distance between fibre-fibre bonds and the bond area surfaces

In Fig. 6.7(a), the distribution functions of the distance Δs between the centres of fibre-fibre bonds are plotted for the two investigated wet pressing conditions. Both curves have a quite similar shape. The mean value $\langle \Delta s \rangle$ of the distributions is lower in the case of the highest pressing compared to the lowest, as shown in Tab. 6.3. However, the largest ratio of the standard deviation $\sigma_{\Delta s}$ to the mean value $\langle \Delta s \rangle$ is obtained in the case of the highest pressing showing an increased heterogeneity of this property due to wet pressing. Two possible changes in the microstructure can be at the origin of such evolution: the change in the inclination angle of the fibre cross sections (see Tab. 6.3) and the increase of the number of fibre-fibre bonds

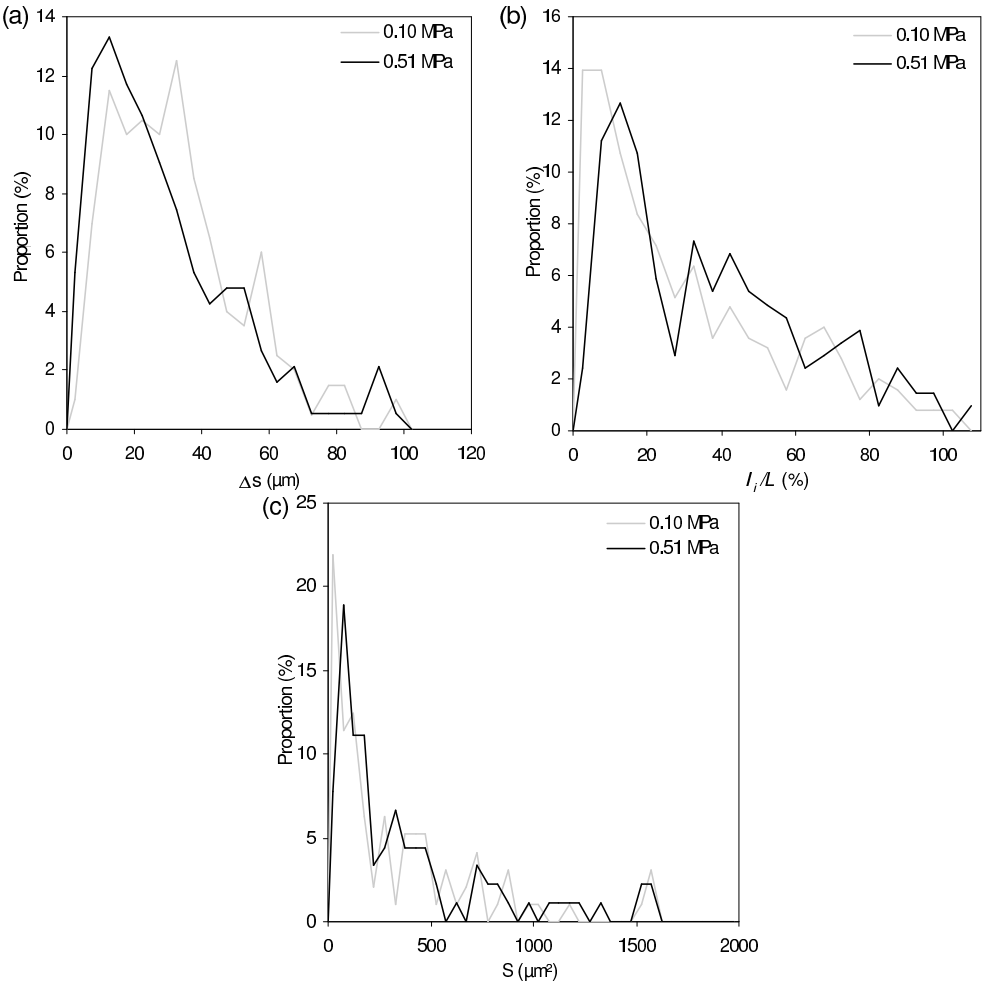


Figure 6.7: Distributions of (a) the distance Δs between centres of bonds, (b) the bonding degree ratio l_i/L, and (c) the bond area surface S for both wet pressing conditions.

both induced by wet pressing.

The distributions of the bonding degree ratio l_i/L are plotted in Fig. 6.7(b) for both studied wet pressing conditions. Both distributions have quite similar shapes, except for l_i/L values ranging between 0% and 20%. In this range, it appears that there are a lot of bonds having a low bonding degree ratio for the lowest pressing at 0.10 MPa, whereas such types bonds are drastically diminished for the highest wet pressing at 0.51 MPa. Furthermore, the proportion of bonds with $l_i/L > 20\%$ is higher for the pressing at 0.51 MPa compared to that at 0.10 MPa. The bonding degree ratio increase between these two pressing conditions is also underlined by the increase of 20% of the mean value of the bonding degree ratio l_i/L (see Tab. 6.3) between the low and high pressing conditions. Such increase of the bonding degree ratio corresponds to a respective gain of 42% of the bond width l_i. However, it is obvious that the major

Packing stress (MPa)	0.10	0.51
Mean inter bond distance $\langle \Delta s \rangle$ (μm)	35.9	32.4
Standard deviation $\sigma_{\Delta s}$ (μm)	16.5	24.5
$\sigma_{\Delta s}/\langle \Delta s \rangle$	46%	76%
Mean bonding degree ratio $\langle l_i/L \rangle$ (%)	30	36
Standard deviation $\sigma_{l_i/L}$ (%)	25	25
$\sigma_{l_i/L}\langle l_i/L \rangle$	83%	69%
Mean bond area surface $\langle S \rangle$ (μm^2)	337	380
Standard deviation σ_S (μm^2)	374	400
$\sigma_S \langle S \rangle$	111%	105%

Table 6.3: Mean distance between the centres of two consecutive bonds $\langle \Delta s \rangle$, ratio between bonded width and fibre width $\langle l_i/L \rangle$ and surface of bonds $\langle S \rangle$ for various pressing conditions, and related standard deviations of such parameters, respectively $\sigma_{\Delta s}$, $\sigma_{l_i/L}$ and σ_S.

part of the bonds are partial for both pressing conditions. Finally, as the ratio of the standard deviation $\sigma_{l_i/L}$ to the mean value of the bonding degree ratio $\langle l_i/L \rangle$ is diminished when increasing the pressing, the bonds have a tendency to get more geometrical homogenised properties with the wet pressing.
The distributions of the bond area surface are displayed in Fig. 6.7(c) for the two pressing conditions. The bond area surface ranges between ≈ 10 to ≈ 1500 μm^2 for both pressing conditions. A larger amount of bonds having a low surface ($S < 250$ μm^2) are present in the low pressed paper compared to the high pressed paper. The increase of the bond area surface with increasing the wet pressing is also observable when considering the mean bond area surfaces $\langle S \rangle$ displayed in Tab. 6.3 and equal to 337 μm^2 and to 380 μm^2, for the low and high pressings, respectively. Thus, there is a growth of 13% of the mean value of the bond area surface due to the increased packing stress during wet pressing. However, as exemplified by the values of the ratios $\langle S \rangle/\sigma_S$ in Tab. 6.3, the heterogeneity of the bond area surface is slightly decreased with the increase of wet pressing. Similarly to the previous observation for l_i/L, the wet pressing can be considered as homogenising the bonds' geometry of the paper.

6.5 Discussion

Several microscopy techniques were developed to observe the morphological features of fibres and bonds. They were devoted to the analysis of fibres and bonds present in a paper fibrous networks [19, 14, 20, 7, 9, 49] or of fibres and bonds that were especially and individually prepared [42, 43, 44, 20, 21]. For instance, He *et al.* [19, 14, 20, 7] applied confocal laser scanning microscopy to study the morphology of fibres and to determine the number of bonds and their inter bond distance in paper handsheets. This technique utilises specimens where fibres are first dyed [19] and then embedded in an epoxy resin. Such assembly is then

ground to expose the specimen cross-sections. It is therefore a destructive technique that requires a careful preparation of the studied specimens. Furthermore, it seems that the serial grinding can only be performed in an arbitrary direction that may cause some difficulties to perform a complete 3D analysis of the geometry of all fibres and inter bond distances.
Compared to the microscopy techniques, X-ray microtomography obviously allows such versatility when investigating 3D structures to obtain quantitative microstructural data. However, the approach of He *et al.* allows the measurement of geometrical parameters for a reasonably large set of individual fibres in a network. The technique was applied to highlight morphological changes induced by wet pressing and delivered noticeable data. The comparison and the similarity of their observations with ours is addressed below.
Recently, Kappel et al. [20, 21] used polarised light microscopy to visualise individual fibre-fibre bonds. In [19], they compared their results to cross-sectional microtome sectioning technique (see another example of such microtome technique in [49]) combined to image analysis. Thomsom *et al.* [42] used fluorescence microscopy to observe fibre-fibre bonds, the effect of drying and rewetting [43], or pressing [44] on bonds. These three techniques (polarised light microscopy, fluorescence microscopy and cross-sectional microtome sectional and image analysis) allow few measures to be performed on single fibre-fibre bonds that are extracted from extremely low basis weight handsheets [44, 19]. Therefore the network influence on the development of their morphology during papermaking unit operations may be lost (*cf.* conclusion remark in [19]). This appears as a main drawback despite the precision of their dimensional measurements. The average surface of bonds that was determined by some of these authors (for example, 1130 μm^2 for mixed spruce and pine kraft pulp fibres in [19]) is quite larger than the present measured average bond surface (average bonds' surface ranging between 337 and 380 μm^2 ; see Tab.6.3) for fibres having in all cases cross-section dimensions that may be reasonably comparable. Even though the surface of the bonds that are measured by the microtomography approach or by the microscopic approaches are of the same order, their average values exhibit a great difference that might reflect the influence of the bond preparation technique. Moreover, such comparisons are extremely delicate to carry out as all fibres used in the literature work may have been extracted, or treated differently. Further work has to be performed to complete the quantitative database on the bond morphology and surface using X-ray microtomography, but also using the various recently improved microscopy techniques.
The various microstructural descriptors that have been defined and measured in this study are not exhaustive. However, they deliver important information about both the mechanisms of the changes of pulp fibre networks, and of the morphology of fibre cross sections and bonds induced by the wet pressing operation. The fibre cross section inclination, width and thicknesses could have been determined. In parallel, an unprecedented *in situ* analysis of the fibre-fibre bond surface in pulp fibre networks could have been undertaken with some highlights on the bond area surface and on the as-called relative bonding degree.

Some trends associated to the consolidation of the paper fibrous network during wet pressing are clearly highlighted:

- At low pressing, the fibre cross sections and bonds exhibit quite heterogeneous morphological properties. The heterogeneity of the measured structural data was generally reduced when increasing the wet pressing, except the distance between bonds which quite astonishingly increased.
- The analysis of the changes of the cross section of the fibres, *i.e.* the transverse changes of fibres, during wet pressing reveals several features: for example, at low pressing the cross sections of fibres are predominantly uncollapsed or partially collapsed, and exhibit a large variety of inclination angles. At high pressing, the cross section of fibres tends to fully collapse, and their inclination is reduced: their major axis becomes parallel to the main plane of paper sheets.
- Further, the bonding degree ratio is low at low pressing and increases at high pressing. The bond surfaces follow on the average a similar trend. The mechanisms of such increases might be related to the collapse of the fibre cross sections and to the change of their inclination angles.

The validity of the observations performed using the X-ray images is supported by the similitude of the measured distributions for some parameters that are common to our study and in studies by He *et al.*[14, 20] for the paper behaviour during wet pressing. For instance, the distributions measured for Δs, which is the so-called free segment lengths defined by He *et al.*, show a great similitude in their shape. The peak values of the histograms are close in both approaches and follow the same trend: *i.e.* a shift of the peak values towards lower inter bond distances as the wet pressing increases [20]. Likewise some observations we made regarding the changes of the cross section inclination angles compared with the main plane of the paper sheet resembles the previous observations of these authors [14]. In both cases, the peaks of the distributions are located at 0° and their values are similar. The distributions become also narrower as the wet pressing increases. Finally, the improvement of the homogeneity of the microstructure properties related to fibres and bonds is also apparent in the results by He *et al.* [14, 20].
Briefly speaking, some of the previous quantitative data about the microstructure of fibres and bonds could be useful to create realistic fibre network models or to enrich the existing approaches for the prediction of the mechanical behaviour of paper: *e.g.* for describing the evolution of parameters such as the Young's modulus and the breaking strain as displayed in Figs. 6.4.
The observed increase of these macroscopic mechanical properties with the wet pressing increase are obviously related to the individual morphological and mechanical properties of

fibres and bonds, and also to the number of these latter. The previous experimental analysis provides a lot of useful morphological data to explain the observed trends: for instance the collapse and the alignment of the fibre cross-sections in the plane of the paper sheet induce (i) an increase of the bond degree ratio, (ii) an increase of the bond surface and (iii) a diminishing of the distance between the centre of bonds (or an increase of the number of bonds per fibre). From these changes, it can be inferred, for example, that the mechanical properties of the bonds and of the inter bond fibre segments will be improved and so the network properties.
Furthermore, some existing models [18] take into account the surface of bonds between fibres and the fibre cross section by introducing the so-called Relative Bonded Area (RBA), *i.e.* the fraction of fibre surface in contact with other fibres [17, 6]. The above experiments show that it would be possible to take into account in mechanical models a description of the bond surface which would be statistically finer. This argument holds also for more recent network models where the bond description remains unfortunately quite poor due to the lack of reliable experimental geometric data.

6.6 Conclusion

The X-ray microtomography technique allows a 3D and discrete analysis of the morphology of individual fibres and bonds of fibre networks to be carried out. The efficiency of the technique was illustrated to analyse fibre and bond geometry changes induced by wet pressing in paper sheets. It was established that an increase of wet pressing had a general tendency to homogenise the geometrical properties of fibre cross sections and bonds. Furthermore, such increase makes the fibre cross sections collapse and their inclination change. At low wet pressing, most bonds are partial and their surfaces are limited, whereas the bonding "degree" ratios and the bond surfaces are increased at higher pressing. Such results were compared with those obtained in the literature by serial cross section grinding and microscopy. They display a good agreement with the previous observations. But they also improve them, particularly regarding the bond surface analysis. It is noticeable that the mean surface of bonds in fibrous networks might appear as being largely lower compared to that measured using single fibre-fibre bonds. The potential of X-ray measurements to profit network models for the prediction of the mechanical behaviour of papers was also briefly discussed.

Bibliography

[1] S.D.Alexander, R. Marton, Effect of beating and wet pressing on fiber and sheet properties, Tappi, 51(6), 283–288, 1968.

[2] C. Antoine, P. Nygard, O. Weiby Gregersen, R. Holmstad, T. Weitkamp, C. Rau, Binarisation of 3d images of paper obtained by phase-contrast X-ray microtomography, Nucl. Instr. and Meth. A490, 392, 2002.

[3] P.A. Åslund, P. Isaksson, A note on the nonlinear mechanical behavior of planar random network structures subjected to in-plane compression, J. Compos. Mat., 45(25), 2697–2703, 2011.

[4] M. Axelsson, S. Svensson, 3D pore structure characterisation of paper, Pattern Anal. Applic., 13, 159–172, 2010.

[5] J. Baruchel, E. Boller, P. Cloetens, W. Ludwig, F. Peyrin, Microtomography at a third generation synchrotron radiation Facility In "X-Ray Tomography in Material Science", ed. Baruchel, Buffière, Maire, Merle, Peix, Ed. Hermes (Paris), 45–59, 2000.

[6] W.J. Batchelor, R.P. Kibblewhite, Calculation of relative bonded area and scattering coefficient from sheet density and fibre shape, Holzforschung, 60(3), 253–256, 2006.

[7] W.J. Batchelor, J. He, W.W. Sampson, Inter-fibre contacts in random fibrous materials: experimental verification of theoretical dependence on porosity and fibre width, J. Mater. Sci., 41(24), 8377–8381, 2006.

[8] G. Chinga, O. Solheim, K. Mörseburg, Cross-sectional dimensions of fiber and pore networks based on Euclidean distance maps, Nord. Pulp Pap. Res. J., 22(4), 500–507, 2007.

[9] G. Chinga-Carrasco, P.O. Johnsen, K. Øyaas, Structural quantification of wood fibre surfaces - Morphological effects of pulping and enzymatic treatment, Micron, 41, 648–659, 2010.

[10] G. Chinga-Carrasco, Microscopy and computerized image analysis of wood pulp fibres multiscale structures, Microscopy: Science, Technology, Applications and Education, edited by Méndez-Vilas A. and Díaz J., 2182–2189, 2011.

[11] C. Délisée, E. Badel, J. Lux, J. Malvestio, 3D microstructural characterization and local densification of cellulosic fibrous insulators under compression, Eur. J. Env. Civ. Eng., 13(4), 429–442, 2009.

[12] O. Guiraud, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, Microstructure and deformation micro-mechanisms of concentrated fiber bundle suspensions: an analysis combining X-ray microtomography and pull-out tests, submitted in J. Rheol., 2012.

[13] J. He, W.J. Batchelor, R. Markowski, R.E. Johnston, A new approach for quantitative analysis of paper structure at the fibre level, Appita J., 56(5), 366–370, 2003.

[14] J. He, W.J. Batchelor, R.E. Johnston, The behavior of fibers in wet pressing, Tappi J., 2(12), 27–31, 2003.

[15] J. He, W.J. Batchelor, R.E. Johnston, A microscopic study of fibre-fibre contacts in paper, Appita J., 57(4), 292–298, 2004.

[16] S. Heyden, P.J. Gustafsson, Stress-strain performance of paper and fluff by network modelling, 12th Fundamental Research Symposium, Oxford, September 2001.

[17] R. Holmstad, A. Goel, S. Ramaswamy, O.W. Gregersen, Visualization and characterization of high resolution 3D images of paper samples, Appita J., 59(5), 370, 2006.

[18] K. Jayaraman, M.T. Kortschot, Closed-form networks models foe the tensile strength of paper - a critical discussion, Nord. Pulp Pap. Res. J., 13(3), 233–242, 1998.

[19] L. Kappel, U. Hirn, W. Bauer, R. Schennach, A novel method for the determination of bonded area of individual fibre-fibre bonds, Nord. Pulp Pap. Res. J., 24(2), 199–x, 2009.

[20] L. Kappel, U. Hirn, E. Gilli, W. Bauer, R. Schennach, Revisiting polarized light microscopy for fiber-fiber bond area measurement - Part I: Theoretical fundamentals, Nord. Pulp Pap. Res. J., 25(1), 65–70, 2010.

[21] L. Kappel, U. Hirn, E. Gilli, W. Bauer, R. Schennach, Revisiting polarized light microscopy for fiber-fiber bond area measurement - Part II: Proving the applicability, Nord. Pulp Pap. Res. J., 25(1), 71–75, 2010.

[22] V. Koivu, M. Decain, C. Geindreau, K. Mattila, J.-F. Bloch, M. Kataja, Transport properties of heterogeneous materials. Combining computerised X-ray micro-tomography and direct numerical simulations, Int. J. Comput. Fluid D., 23(10), 713–721, 2009.

[23] V. Koivu, R. Seppänen, T. Turpeinen, K. Mattila, J. Hyväluoma, M. Kataja, Combining X-ray micro-tomography and image analysis to study imbibition and void space in liquid packaging board, J. Pulp Pap. Sci., 36(3-4), 170–179, 2010.

[24] P. Latil, L. Orgéas, C. Geindreau, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, Towards the 3D in situ characterisation of deformation micro-mechanisms within a compressed bundle of fibres, Comp. Sci. Technol., 71, 480–488, 2011.

[25] T.H. Le, P. Dumont, L. Orgéas, D. Favier, L. Salvo, E. Boller, X-Ray Phase Contrast Microtomography for the Analysis of the Fibrous Microstructure of SMC Composites, Compos. Part A-Appl. S., 39, 91–103, 2008.

[26] J.X. Liu, Z.T. Chen, H. Wang, K.C. Li, Elasto-plastic analysis of influences of bond deformability on the mechanical behavior of fiber networks, Theor. Appl. Fract. Mec., 55, 131–139, 2011.

[27] P. Luner, A.E.U Kärnä , C.P. Donofrio, Studies in Interfibre Bonding of Paper. The Use of Optical Bonded Area with High Yield Pulps, TAPPI J., 44(6), 409–414, 1961.

[28] F. Malmberg, J. Lindblad, C. Ostlund, K.M. Almgren, E.K. Gamstedt, Measurement of fibre-fibre contact in three-dimensional images of fibrous materials obtained from X-ray synchrotron microtomography, Nucl.Instrum. Methods, 637, 143–148, 2011.

[29] H. Nanko, J. Ohsawa, Mechanisms of fibre bond formation, Fundamentals of Papermaking, Trans. IXth Fund. Res. Symp. Cambridge, 1989.

[30] K. Niskanen, H. Rajatora, Statistical geometry of paper cross-sections, J. Pulp Pap. Sci., 28(7), 228–233, 2002.

[31] L. Orgéas, P.J.J. Dumont, J.-P. Vassal, O. Guiraud, V. Michaud, D. Favier, In-plane conduction of polymer composite plates reinforced with architectured networks of Copper fibres, J. Mat. Sci., 47, 2932–2942, 2012.

[32] P. Perona, J. Malik, Scale space and edge detection using anisotropic diffusion, IEEE T. Pattern Anal., 12, 629–639, 1990.

[33] S. Rolland du Roscoat, X. Thibault, J.-F. Bloch, Synchrotron radiation microtomography applied to investigation of paper, J. Phys. D Appl. Phys., 38, A78–A84, 2005.

[34] S. Rolland du Roscoat, M. Decain, X. Thibault, C. Geindreau, J.-F. Bloch, Estimation of microstructural properties from synchrotron X-ray microtomography and determination of the REV in paper materials, Acta Mater., 55, 2841-2850, 2007.

[35] S. Rolland du Roscoat, M. Decain, C. Geindreau, X. Thibault, J.-F. Bloch, Microstructural analysis of paper using synchrotron X-ray microtomography: numerical estimation of the permeability and effective thermal conductivity, Appita J., 61, 286–290, 2008.

[36] L. Salvo, M. Suéry, A. Marmottant, N. Limodin, D. Bernard, 3D imaging in material science: Application of X-ray tomography, C.R. Phys., 11, 9–10, 2010.

[37] E. J. Samuelsen, E. J., Helle, T., Houen, P. J., Gregersen, O. W., Raven, C. (1999): Three-dimensional imaging of paper by use of Synchrotron X-Ray Microtomography, International Paper Physics Conference, 307-312.

[38] E. J. Samuelsen, P. J. Houen, O. W. Gregersen, T. Helle, C. Raven, (2001): Three-dimensional imaging of paper by use of synchrotron x-ray microtomography, J. Pulp Pap. Sci., 27(2), 50-53.

[39] W.W. Sampson, A model for fibre contact in planar random fibre networks, J. Mat. Sci. 39, 2775–2781, 2004.

[40] W.W. Sampson, Materials properties of papers as influenced by its fibrous microstructure, Int. Mater. Rev., 54(3), 134–156, 2009.

[41] J. Strömbro, P. Gudmundson, An anisotropic fibre-network model for mechano-sorptive creep in paper, Int J Solids Struct., 45, 5765–5787, 2008.

[42] C.I. Thomson, R.M. Lowe, A.J. Ragauskas, Imaging celulose fibre interfaces with fluorescence microscopy and resonance energy transfer, Carbohyd. Polym., 69(4), 799–804, 2007.

[43] C.I. Thomson, R.M. Lowe, A.J. Ragauskas, First characterization of the development of bleached kratf softwood pulp fiber interfaces during drying and rewetting using FRET technology, Holzforschung, 62, 383–388, 2008.

[44] C. Thomson, R. Lowe, D. Page, A. Ragauskas, Exploring fibre-fibre interfaces via FRET and Fluorescence micoscopy, J. Pulp Pap. Sci., 34(2), 113–119, 2008.

[45] A. Torgnysdotter, A. Kulachenko, P. Gradin, L. Wågberg, The link between the fiber contact zone and the physical properties of paper: a way to control paper properties, J. Compos. Mat., 41(13), 1619–1633, 2007.

[46] T. Uesaka, C. Moss, Y. Nanri, The characterization of hygroexpansivity in paper, International Paper Physics Conference Proceedings, TAPPI Press, Atlanta (GA), USA, 613–622, 1991.

[47] P. Vernhes, A. Blayo, J. F. Bloch, B. Pineaux, A new approach to model and characterize the heating up and spreading of toner particles trough the nip of an electrophotographic printer, Taga J. 3, 188–203, 2007.

[48] J. Viguié, P.J.J. Dumont, E. Mauret, S. Rolland du Roscoat, P. Vacher, I. Desloges, J.-F. Bloch, 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. Mat. Sci., 46(14), 4756–4769, 2011.

[49] M. Wiltsche, M. Donoser, J. Kritzinger, W. Bauer, Automated serial sectioning applied to 3D paper structure analysis, J. Microsc., 242, 197–205, 2011.

Chapitre 7

3D analysis of microstructural properties of paper fibrous networks at fibre and bond scale

Ce chapitre est basé sur un article actuellement soumis dans le journal *Cellulose*.

Résumé

L'évolution des microstructures papetières, telles que la porosité et l'orientation des fibres, est le plus souvent mesurée de manière globale. Pour la modélisation des propriétés physiques et mécaniques de ces matériaux, il serait très utile de comprendre les micro-mécanismes de déformation individualisés des fibres et des liaisons à l'intérieur des réseaux trois dimensions de fibres papetières, dont l'architecture est intimement liée aux opérations de fabrication du papier. Cette description représente actuellement un défi majeur. Cela nécessite des outils d'observation adaptées à la complexité de la géométrie des réseaux fibreux, des fibres et des liaisons entre fibres, ainsi que la définition et la mesure de descripteurs pertinents. La présente contribution est basée sur l'analyse d'images tridimensionnelles obtenues par micro-tomographie aux rayons X d'une série de papiers de laboratoire réalisés en faisant varier les paramètres de formation, pressage et séchage des opérations de fabrication. Pour chaque échantillon imagé – en dépit des difficultés liées à une analyse fine et non automatisée – l'étude permet de mesurer un grand nombre de paramètres sans précédent pour décrire la géométrie de la fibre et des liaisons entre fibres. À partir de telles mesures, des descriptions statistiques des paramètres de microstructure peuvent être obtenus et leur évolution avec des opérations de fabrication du papier peuvent être analysés. Les résultats

obtenus concordent bien avec les données de la littérature obtenus en utilisant d'autres techniques d'investigation. Ils peuvent également être utilisés pour estimer la validité des autres techniques de mesures, par exemple, dans le cas de l'estimation de l'aire relative liée (RBA). Un intérêt essentiel des résultats obtenus est qu'ils peuvent être utilisés pour la validation de modèles de microstructures de réseaux fibreux. Cet aspect est particulièrement souligné concernant l'évolution du nombre de contacts fibre-fibre en fonction de la densité du réseau. Enfin, nous verrons dans les chapitres 11 et 12 qu'ils forment un socle de données très précieux pour formuler des hypothèses microstuctrales et micromécaniques pertinentes.

Abstract

The evolution of paper microstructures, *e.g.* porosity and fibre orientation, when changing papermaking conditions is most often globally measured. For modelling the physical and mechanical properties of such fibrous materials, it would be highly beneficial to understand deformation micro-mechanisms induced by papermaking operations within the internal three-dimensional paper fibrous networks for individual fibres and fibre-fibre contacts. This is still highly challenging. It requires observation tools adapted to the complexity of the geometry of fibrous networks, fibres and fibre-fibre contacts as well as the definition and measurement of relevant microstructure descriptors. Thus the present contribution is based on the analysis of three-dimensional images obtained by X-ray microtomography of a series of model papers produced by varying the formation, pressing and drying manufacturing conditions. For each imaged sample – despite the difficulties to extract automatically microstructure information – the analysis allows the measurement of an unprecedented large set of parameters to describe the geometry of individual fibres (centrelines and cross section shapes and inclinations) and fibre-fibre bonds (interdistance, morphology, area and number). From such measurements, statistical descriptions of the microstructure parameters can also be obtained and their evolution with papermaking operations is analysed. Results compare well with some other literature data obtained using different investigation techniques. They can also be used to estimate the validity of other measurement techniques, *e.g.* in the case of the estimation of the Relative Bonded Area (RBA). Finally a key interest of the obtained results is that they deserve the validation of fibrous network microstructure models. This aspect is particularly emphasised for the evolution of the number of fibre-fibre contacts with the network density.

7.1 Introduction

Paper represents a distinctive class of fibrous materials. It is maybe the most widespread man-made fibrous material. Its main constituents are lignocellulosic fibres (mainly wood pulp fibres) that form its structural scaffold where mineral fillers and a small amount of other

chemical products to obtain specific manufacturing or end-use product properties. Namely paper materials can be seen as networks of lignocellulosic fibres that are strongly linked together due to chemical bonding, e.g. hydrogen bonding, at their contacts. From the same raw pulp fibres, it is possible to produce paper products that exhibit a broad range of physical and mechanical properties. This reflects the choice of adequate parameters for papermaking operations such as fibre refining, formation, pressing and drying operations that induce drastic microstructural changes in the fibrous networks [1, 2].

For upscaling modelling strategies of paper physical and mechanical properties, there is a need to give relevant and accurate representation of paper microstructures [3]. More generally, it is necessary to better understand the influence of the modifications induced by papermaking operations at the microstructural scale, i.e. fibre and bond or contact scales, on paper properties. But obtaining microstructural descriptors of the morphology of fibres and bonds is very difficult. As briefly reviewed in a previous contribution [5], this objective relies on great and extensive microscopic studies performed on a large set of various paper specimens to obtain statistical representative descriptors. Among current microscopy techniques, X-ray microtomography emerges as being rather unique as it delivers three-dimensional images of the studied microstructures contrary to mostly used usual microscopy techniques which generally provide 2D informations. Potentially, three-dimensional images of fibrous networks contain all the geometrical and topological information needed about fibres and fibre-to-fibre bonds within paper fibrous networks. To date the exploitation of such images remain limited by the lack of current automatic image analysis techniques to extract relevant information despite the increasing research activities to reach this objective (see the review of such studies given by Viguié et al. [4]). In a recent study [5], we however demonstrated that it was possible to obtain from x-ray microtomography images a large set of microstructural information on individual fibres and bonds within paper fibrous networks using for that a "hand-made" and consequently time-consuming but efficient analysis.

Here we complete this first feasibility study and we explore more deeply the influence of processing parameters on the geometry of fibre and fibre-to-fibre bonds. For that, model papers made up of unrefined softwood fibres were produced varying formation (in-plane fibre orientation), pressing and drying conditions. Using x-ray microtomography images, their influence on the orientation of fibre segments is measured in situ within the fibrous network together with the orientation and shape of fibre cross sections. Statistical distribution functions are proposed to fit the populations of these parameters. Besides, the influence of processing on fibre-to-fibre bonding is more particularly investigated as this problem constitutes a major objective of microstructural analyses of paper fibrous networks [3]. For instance, good description of fibre bonds is indeed a key input of our understanding of the mechanical performance of fibrous networks. Therefore, experimental measurements of the number of fibre-to-fibre bonds are compared with theoretical predictions of Sampson's modelling work for in-plane isotropic fibrous networks [6, 7, 8] or of the so-called tube model [9] adapted to

the case of networks of fibres that exhibit elliptical cross sections and planar orientation [2]. The description of fibre-to-fibre bonds also requires an estimation of the area of contacts and more generally of the Relative Bonded Area (RBA), i.e. the fraction of fibre surface that is in contact with other fibres within the fibrous networks. Using acquired data, both parameters are estimated.

7.2 Materials and experimental procedures

7.2.1 Pulp fibres and model papers

Model papers were produced using an unbeaten bleached and classified softwood pulp from maritime pine. Fig. 7.1(a) gives the distribution length of the pulp fibres: see [5] for the measurement technique. Fibre width distribution was measured (in a wet state) by an optical microscopy technique: see Fig. 7.1(b). Paper handsheets having a targeted basis weight G = 40 g m^{-2} were produced using a Rapid Köthen former (Karl Frank GMBH, Weinheim, Germany) and a dynamic handsheet former (Techpap, Grenoble, France) to confer to the produced networks an in-plane isotropic or an in-plane orientated structure, respectively. The wet obtained handsheets were then pressed between blotters for 3 min at an applied packing stress σ_0. The latter was set between 0.10 MPa and 0.91 MPa. The handsheets were finally dried following two methods: "free" drying and "in-plane constrained" drying. The first method consisted of letting dry handsheets in ambient air by placing them on a metal plate to prevent sticking. The handsheets could deform freely, which resulted here in moderate in-plane and out-of-plane deformation phenomena. An in-plane shrinkage about approx. -0.25% could be measured and few cockles observed. The in-plane constrained drying method consisted of placing pressed handsheets in the Rapid Köthen machine drying system for 6 min at 85°C. After drying, handsheets did not exhibit any in-plane shrinkage and any out-of-plane deformation. Such constrained drying conditions are known to induce complex residual stress states in the fibrous networks [16].
Basic structural properties (thickness t, basis weight G) were then measured for each handsheet after processing and storage in environmentally controlled rooms (T=23°C and 50 % RH) to estimate the paper apparent density ρ_{app}. The apparent porosity ϕ_{app} of papers was also estimated from ρ_{app} and from the density of pure cellulose $\rho_{cellulose}$ taken equal to 1500 kg m^{-3} [20], and considering that fibres were only composed of cellulose:

$$\phi_{app} = 1 - \frac{\rho_{app}}{\rho_{cellulose}}. \tag{7.1}$$

The orientation distributions of fibres were measured by identifying the red dyed fibres appearing at the surface of the handsheets as shown in Figs. 7.1(c) and 7.1(d) and determining an in-plane orientation angle for each segment measured along all scanned fibres [24, 25].

Distribution functions became representative (stable) from about 1200 segments. Typical fibre orientation distributions are depicted in Fig. 7.1(e), resp. Fig. 7.1(f), for isotropic papers, resp. for in-plane orientated papers. In the latter case, a preferential orientation of fibres in the so-called Machine Direction "MD" (0°) compared to the Cross Direction "CD" (-90°/90°) can be observed.

7.2.2 Basic mechanical measurements

The mechanical properties of model papers were studied by using a commercial horizontal tensile testing device (Lorentzen & Wettre No. 162, tensile tester) installed in an air conditioned room (temperature of 23°C and relative humidity of 50 %). The Young's modulus E, the tensile strength T and the ultimate stress σ_u were calculated for each specimen.

7.2.3 Optical measurements and relative bonded area

The Relative Bonded Area (RBA) of a fibrous network is defined as the ratio $\frac{A_T - A}{A_T}$, where A_T is the potential total area available for fibre bonding and A is the remaining fibre unbonded area after processing.
In order to get an estimation of the RBA, the method proposed by Ingmanson and Thode [23] based on the measurement of the optical scattering coefficient S_c was first followed. This method assumes a proportional relation between S_c and the total surface area $A_s \approx A$ available for light scattering. By determining S_{c0} the scattering coefficient for a completely unbonded sheet of area $A_{s0} \approx A_T$, it is possible to get an estimation for the RBA:

$$RBA \approx \frac{A_{s0} - A_s}{A_{s0}} = \frac{S_{c0} - S_c}{S_{c0}}. \tag{7.2}$$

S_c can be obtained from light reflectance values R_0 and R_∞ as specified in the Kubelka and Munk theory (see for instance [16]):

$$S_c = \frac{R_\infty}{G(1 - R_\infty^2)} \ln\left(\frac{1 - R_0 R_\infty}{R_\infty - R_0} R_\infty\right). \tag{7.3}$$

Practically, measurements here were performed with a light wavelength $\lambda = 457$ nm using a reflectance spectrophometer (Colour Touch 2, Technidyne, New Albany, IN, USA) for all produced papers. Besides, S_{c0} was extrapolated from the evolution of S_c with respect to (i) the tensile strength T, as suggested by Ingmanson and Thode [23] or to (ii) the apparent density of papers as in the more recent approach proposed by Batchelor and He [26].

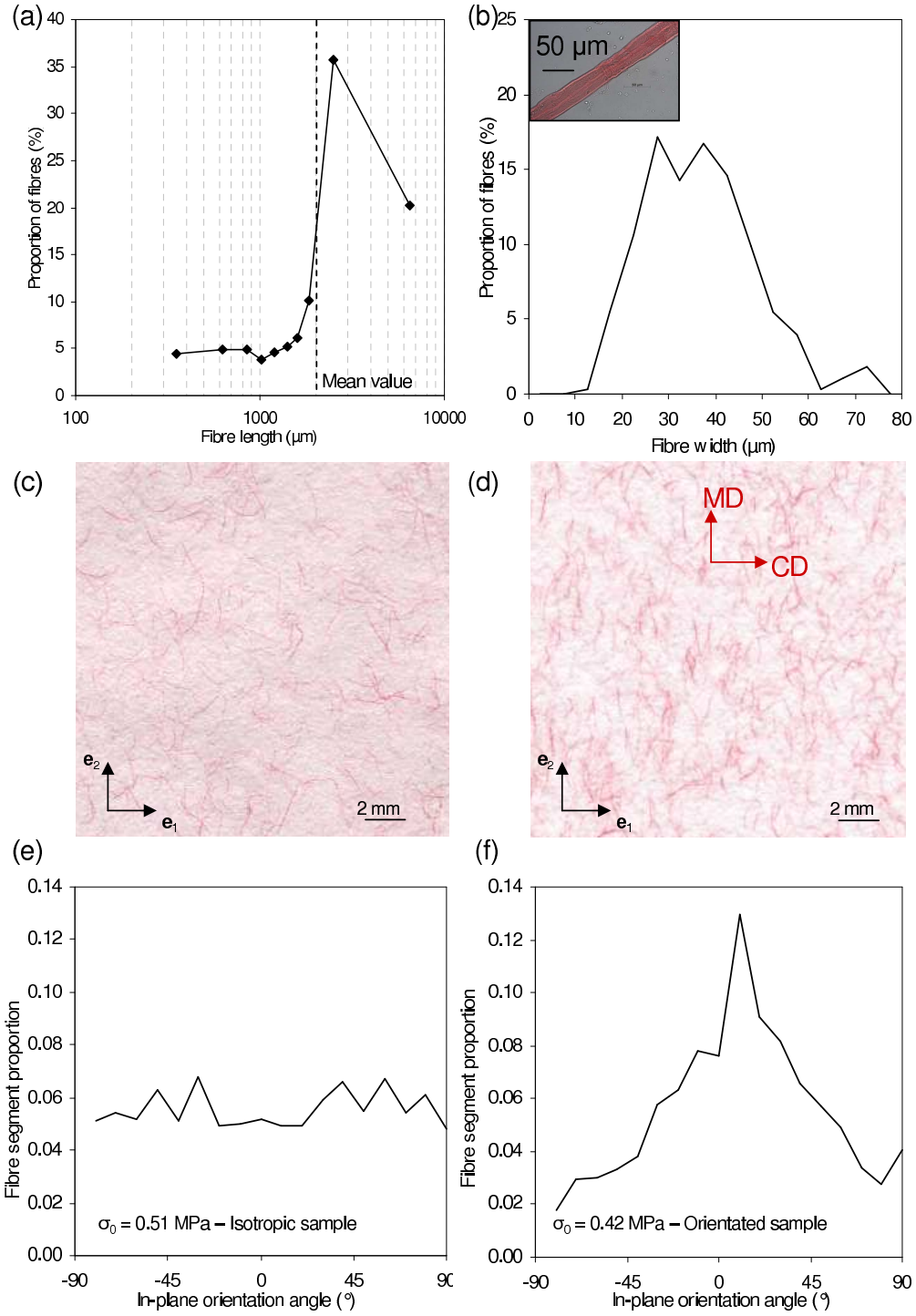


Figure 7.1: (a) Length and (b) width distributions of the tested maritime pine pulp fibres measured after the screening operation and in wet conditions. Top view of (c) an isotropic model paper (σ_0 = 0.51 MPa, constrained drying), resp. (d) an orientated model paper (σ_0 = 0.42 MPa, constrained drying), and (e), resp.(f), corresponding fibre orientation distribution functions.

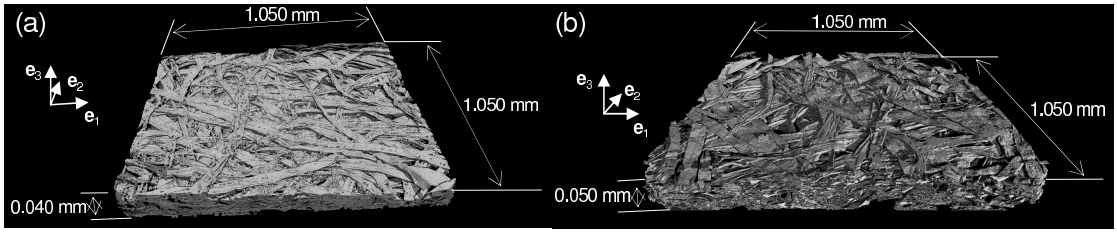


Figure 7.2: 3D reconstructions obtained by X-ray microtomography of (a) an isotropic paper wet pressed at σ_0 = 0.51 MPa and (b) an orientated paper wet pressed at σ_0 = 0.42 MPa. Both papers were dried under constraint.

7.2.4 Microstructure imaging by X-ray microtomography

X-ray microtomography was performed at the European Synchrotron Radiation Facility (ESRF, ID19 beamline, Grenoble, France) to get 3D images of the model paper microstructures (X-ray energy = 17.6 ± 0.9 keV, CCD detector of 2048 × 2048 pixels, voxel size 0.7 μm × 0.7 μm × 0.7 μm). Fast scans of small paper specimens of dimensions close to 1.4 mm × 1.4 mm × t mm extracted from the produced sheets were achieved. Image treatments similar to those detailed in [5] were carried out. Typical resulting images are shown in Fig. 7.2(a), resp. Fig. 7.2(b). For subsequent measurements of microstructural descriptors (see below), the size of the treated volumes was 140 μm × 140 μm × t, see Fig. 7.3(a), or 200 μm × 200 μm × t where t is the paper thickness.

7.3 Descriptors of fibres and fibre-fibre bonds

To get quantitative data on the fibrous microstructures, various image analysis operations were performed. They are are briefly described below and summarised in Fig. 7.3. They were performed on 9 scanned volumes having various formation, pressing and drying conditions.
Porosity - The porosity ϕ_X of the model papers was calculated using the segmented X-ray microtomography images. In that case, the porosity noted ϕ_X was estimated as the ratio between the sum of the black voxels (*i.e.* the volume occupied by the pores) and the sum of all voxels (*i.e.* the volume of the imaged specimens). Note that compared to a previous study [5], Φ_X was here calculated in the bulk of the paper microstructure [1], *i.e.* without accounting for "boundary layers". Consequently, the measured porosities are lower as a those estimated in the previous study. Besides the (effective) density $\rho_X = \rho_{cellulose}(1-\Phi_X)$ was calculated.
Characterisation of the fibre centrelines - Determining the fibre centrelines in the microtomography images was carried out by manually picking the centres of mass of several cross sections of this fibre parallel to the $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_3)$ or $(\boldsymbol{e}_2, \boldsymbol{e}_3)$ planes of the microtomography image frame within bond zones (one picked point per fibre per bond zone) [5, 2]. This procedure led to extract the fibrous skeleton of each studied volume: see Fig. 7.3(b). Furthermore, as

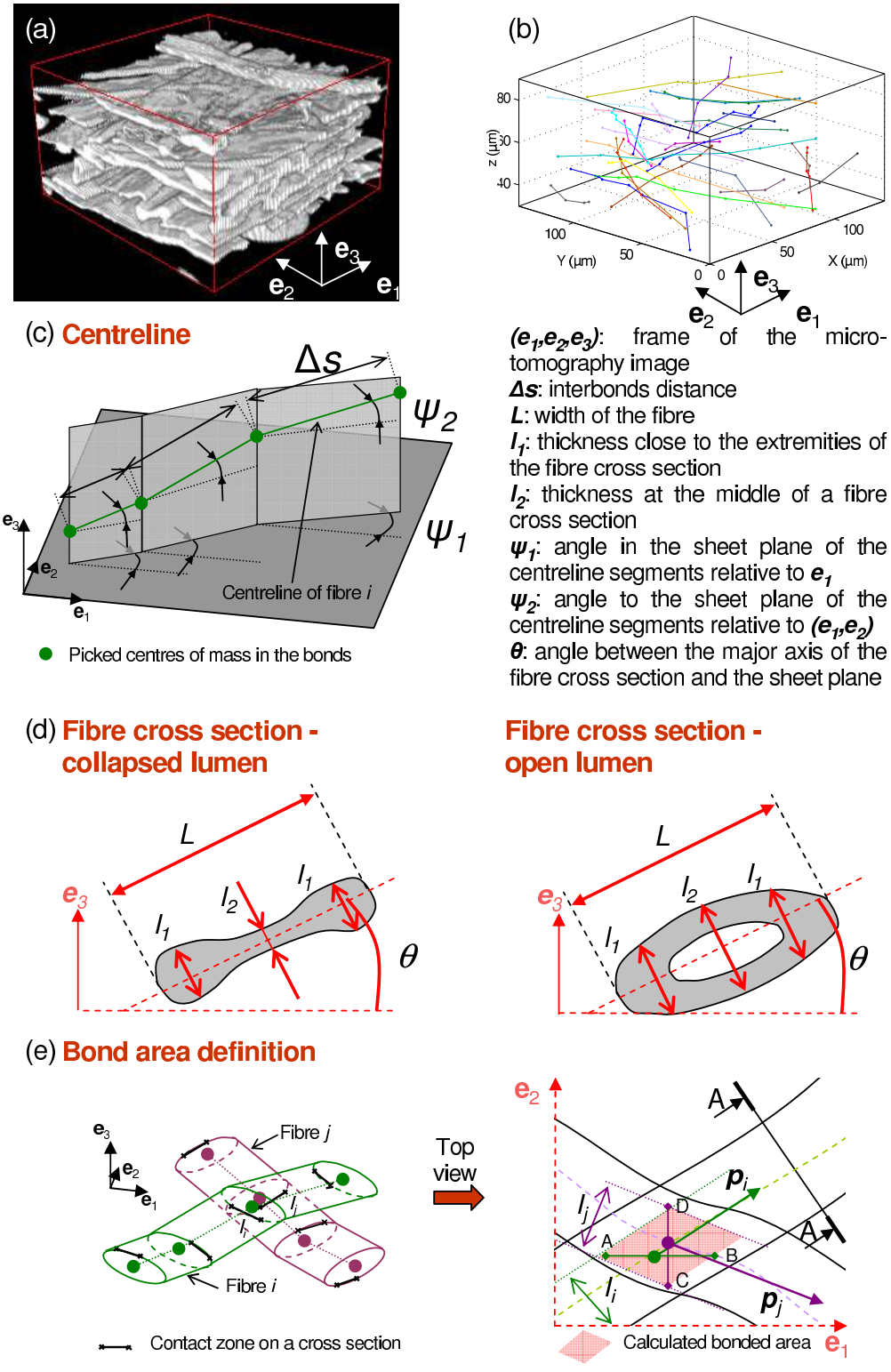


Figure 7.3: (a) Volume of 140 μm × 140 μm × 90 μm extracted from the volume shown in Fig. 7.2. (b) Corresponding fibre skeleton. (c) Schematic view of a fibre centreline and its descriptors Ψ_1, Ψ_2 and Δs. (d) Schematic view of fibre cross sections with a collapsed (left) or an open (right) lumen and their descriptors L, l_1, l_2 and θ. Bond surface areas were calculated following the principle depicted in (e).

depicted in Fig. 7.3(c), the orientation of each segment of the centrelines as characterised by both their angle in the sheet plane ψ_1 and their angle to the sheet plane ψ_2:

$$\psi_1 = \tan^{-1}\left(\frac{\boldsymbol{AB}.\boldsymbol{e}_2}{\boldsymbol{AB}.\boldsymbol{e}_1}\right), \tag{7.4}$$

$$\psi_2 = \sin^{-1}\left(\frac{\boldsymbol{AB}.\boldsymbol{e}_3}{\|\boldsymbol{AB}\|}\right). \tag{7.5}$$

Characterisation of the fibre cross section - The following principal dimensions of the fibre cross sections were measured: width L and thicknesses l_1 and l_2 (see Fig. 7.3(d)). The inclination angle θ between the major axis of the fibre cross section and the plane $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ was also measured. To obtain statistical representative distributions, at least 120 measurements of each descriptor were performed within a scanned volume.
Characterisation of bonds - The curvilinear abscissae s_i of the centres of the bonds allowed to obtain the distance between the centre of two consecutive bonds k and l: $\Delta s_{kl} = s_k - s_l$.
The general aspect of bonds between two contacting fibres i and j , is represented in Fig. 7.3(e). As the fibres were quite flat, the bond surface area S could be roughly estimated as that of a parallelogram (right scheme in Fig. 7.3(e)):

$$S \approx \frac{l_i l_j}{\|\boldsymbol{p}_i \times \boldsymbol{p}_j\|}, \tag{7.6}$$

where l_i, resp. l_j, is the width of the bond on fibre i, resp. j. Practically, it was possible to assess the surface of about 80 bonds per specimen to build bond surface area distribution functions.
Characterisation of the bonding degree ratio - For each bond k along a given fibre, the ratio l_k/L between the bond width l_k and the fibre width L was calculated. This measurement can be seen as the bonding degree ratio: a ratio of 1 stands for a full contact and a lower ratio stands for a partial contact.

7.4 Microstructure and mechanical properties of the fibrous networks

7.4.1 Porosity

The apparent porosity ϕ_{app} of model papers is a decreasing function of the packing stress during wet pressing whatever the kind of fibre orientation and drying conditions: see Figs. 7.4(a), resp. 7.4(b), for isotropic, resp. orientated samples. A sharp decrease of the apparent porosity is first observed. Then this trend tends to stabilise with the packing stress increase.

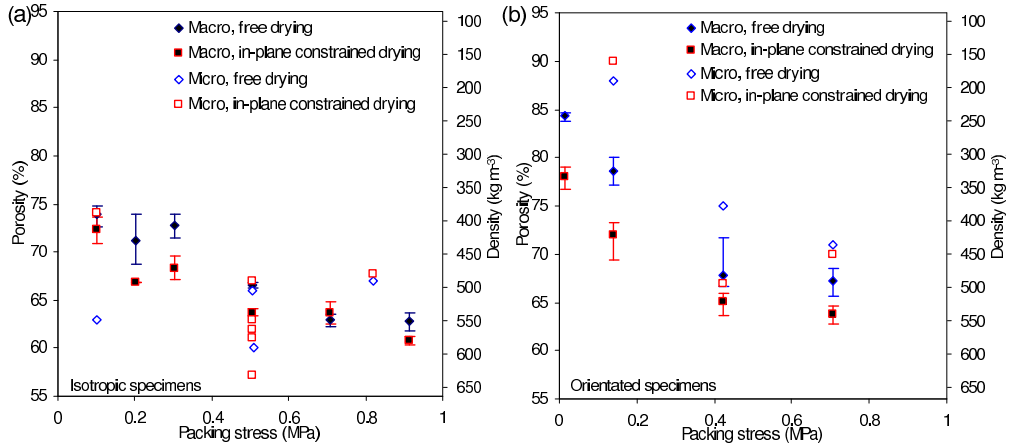


Figure 7.4: (a,b) Porosities ϕ_{app} and ϕ_X and corresponding density ρ_{app} of model papers (HR=50 %) as a function of the packing stress for (a) isotropic and (b) orientated specimens. Apparent porosity data are averaged over five test results for each paper type. The minimum and maximum values are used to show the scatter of the measurements.

For example, in the case of in-plane constrained dried isotropic papers, a decrease of 12% of the apparent porosity is observed for a packing stress ranging from 0.10 MPa to 0.51 MPa, whereas the decrease is only about 4% from 0.51 MPa to 0.91 MPa. Note that the stabilisation at high packing stress of the consolidation of paper fibrous networks is a classically observed phenomenon with increasing paper wet pressing conditions [12, 13]. Furthermore, the trends for isotropic and orientated specimens are more or less the same. Drying conditions do not appear as having a large influence on the observed consolidation trends. The slight decrease of porosity observed for constrained dried specimens compared to freely dried specimens can be attributed to the Rapid Köthen drying technology consisting of maintaining between platens the handsheets, which certainly results in applying a slight extra packing stress.
Corresponding results for ϕ_X obtained for specimens cut in each handsheet are plotted on the same graphs. Globally there is also a decrease of ϕ_X with σ_0. Nonetheless the estimated values ϕ_X slightly differ from the values of ϕ_{app}. Contrary to what was observed previously in Marulier et al. [5], there is no systematic rule for the difference between both porosity measurements. Note that previous measurements were performed on a smaller set of specimens which might lead to the erroneous statement that ϕ_{app} was slightly smaller than Φ_X. Such differences between porosity values are commonly encountered when dealing with various measurement methods (see for instance the work by Niskanen and Rajatora [17]). This discrepancy can arise from the differences in the measurement procedure as well as from the size of specimens used to determine ϕ_X: the measurement method of the apparent porosity is indeed prone to deform the paper microstructure whereas the porosity ϕ_X can capture local microstructural changes. Nonetheless the general trend for ϕ_X shows that used specimens also capture the compaction influence induced by the increase of the packing stress on the fibrous microstructure and consequently on the fibres and the fibre-to-fibre bonds.

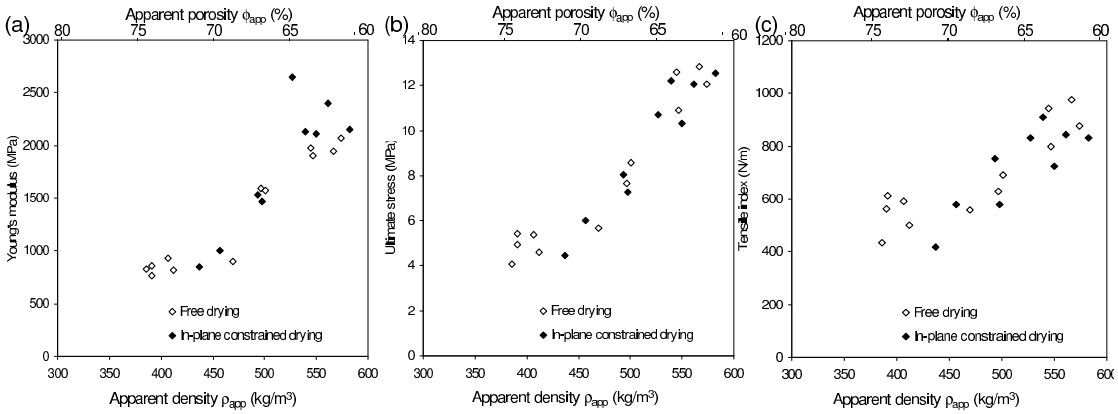


Figure 7.5: Evolution of (a) Young's modulus , (b) ultimate stress σ_u and (c) corresponding tensile strength T with respect to the apparent density ρ_{app} of in-plane isotropic model papers.

7.4.2 Mechanical behaviour

As shown in Fig. 7.5(a), increasing the apparent density (*i.e.* decreasing the paper porosity) of in-plane isotropic model papers has a predominant effect on both increasing the Young's modulus, their ultimate stress or tensile strength. For instance, an increase of the apparent density from about 400 kg m^{-3} to 550 kg m^{-3} leads to an increase of the Young's modulus from approx. 700 MPa to approx. 2500 MPa, whereas the ultimate stress increases from about 4 MPa to 12 MPa. Further the drying operation does not appear to have an obvious effect on the mechanical property on the tested model papers. Then wet pressing appears has the predominant processing operation that has an indirect influence on the paper mechanical property by compacting the paper fibrous network and changing its apparent density ρ_{app} [18].

7.5 Fibrous structure at the fibre and fibre-fibre bond scale

7.5.1 Fibre centrelines

The distributions of the in-plane orientation angle ψ_1 of fibre segments in the case of isotropic, resp. orientated, specimens are presented in Fig. 7.6(a), resp. Fig. 7.6(b). For the first type of specimens, the rather flat distributions show that there is no preferred orientation of the fibre segments whatever the kind of pressing or drying conditions. Concerning the orientated samples in Fig. 7.6(b), a preferred orientation of fibre segments is clear around the 0° direction for the specimen dried under constraint. The intensity of fibre segment orientation in this direction is apparently lower for the freely dried specimen. However, such a trend should be taken cautiously and confirmed by additional measurement. The distributions obtained for

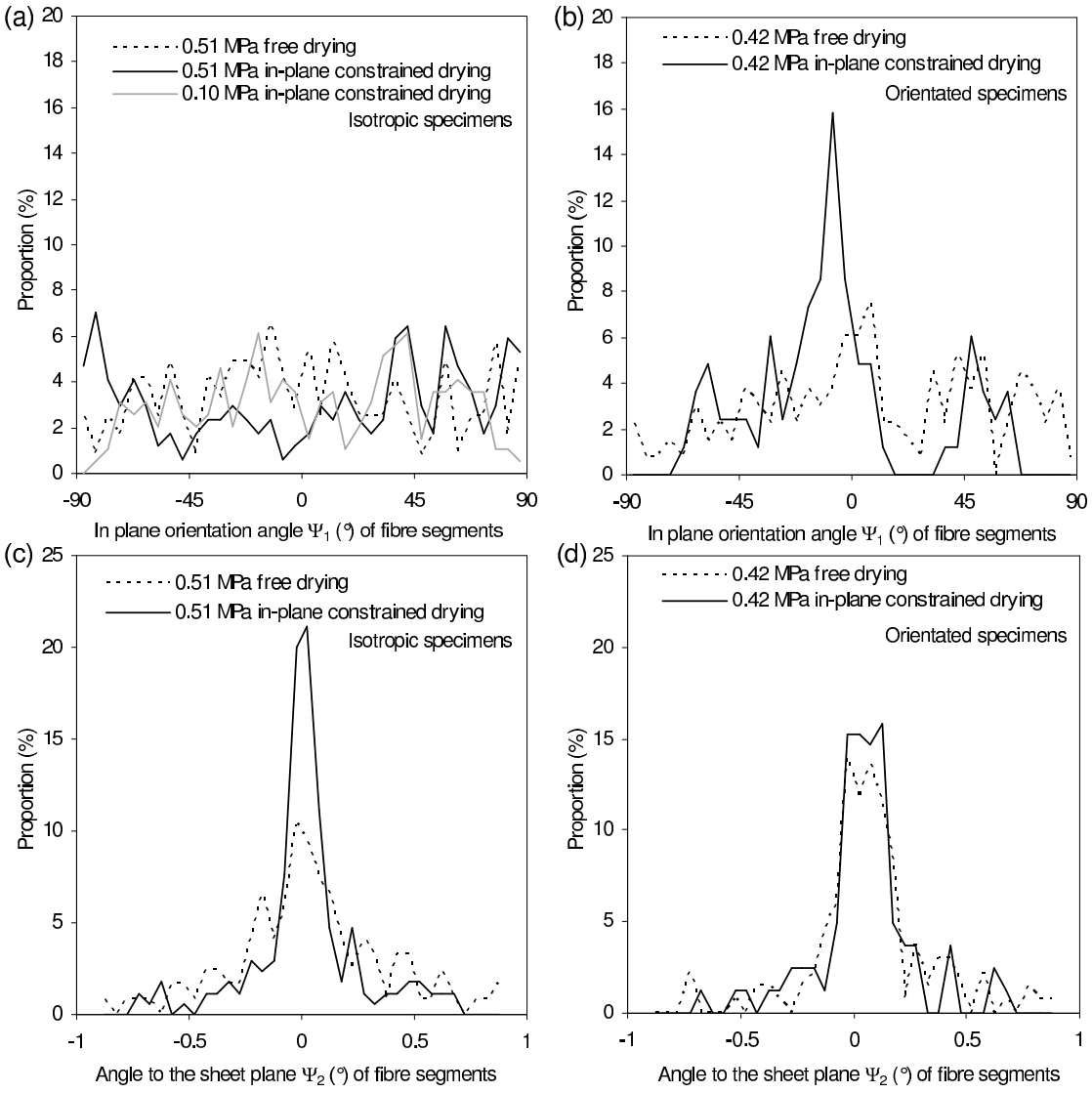


Figure 7.6: Distribution of the angle in the sheet plane ψ_1 of the fibre centreline for (a) isotropic and (b) orientated specimens. Distribution of the angle to the sheet plane ψ_2 of the fibre centreline comparing isotropic (c) and orientated (d) specimens. The interval size for plotting frequency distributions of the considered property is set to 5°, resp. 0.05° for ψ_1, resp. ψ_2.

in-plane isotropic papers roughly exhibit the same shape and the same orientation intensity per orientation class as the typical fibre orientation distribution depicted in Fig. 7.1(e). This is astonishing as the number of measured segments is low compared to the macroscopic study shown in Fig. 7.1(e). But for in-plane orientated specimens, if the global orientation trend is revealed using X-ray microtomography images, the estimated orientation intensities are not representative of the typical macroscopic orientation results displayed in Fig. 7.1(f).
Fig. 7.6(c), resp. (d), shows the segment angle ψ_2 to the sheet plane for in-plane isotropic

Formation	Isotropic				Orientated			
Packing stress (MPa)	0.10		0.51		0.11		0.42	
Drying conditions	F	P	F	P	F	P	F	P
Standard deviation σ_{Ψ_2} (°)	-	0.5	2.4	0.6	1.7	0.4	1.8	0.6

Table 7.1: Mean angle to the sheet plane $\langle\Psi_2\rangle$ and related standard deviation of σ_{Ψ_2} for various forming, pressing and drying conditions (F and P stand resp. for free and in-plane drying conditions).

Formation	Isotropic				Orientated			
Packing stress (MPa)	0.10		0.51		0.11		0.42	
Drying conditions	F	P	F	P	F	P	F	P
Mean width $\langle L\rangle$ (μm)	29.8	30.6	30.6	36.1	29.1	30.0	31.2	29.3
Standard deviation σ_L (μm)	9.3	8.6	8.7	9.8	12.7	15.9	10.4	10.0
$\sigma_L/\langle L\rangle$	31%	28%	28%	27%	44%	53%	33%	34%
Mean thickness $\langle l_1\rangle$ (μm)	7.7	6.8	6.5	6.3	5.8	5.1	4.8	4.9
Standard deviation σ_{l_1} (μm)	1.8	2.0	1.9	1.8	2.7	2.6	2.1	1.7
$\sigma_{l_1}/\langle l_1\rangle$	23%	29%	29%	29%	47%	51%	44%	35%
Mean thickness $\langle l_2\rangle$ (μm)	5.6	5.8	5.0	4.5	5.2	4.8	4.4	4.4
Standard deviation σ_{l_2} (μm)	2.2	1.8	2.1	1.3	3.3	2.8	2.3	1.4
$\sigma_{l_2}/\langle l_2\rangle$	39%	31%	42%	29%	63%	58%	52%	32%
Mean inclination angle $\langle\theta\rangle$ (°)	1.81	-1.76	0.77	0.03	4.2	0.9	0.3	-1.6
Standard deviation σ_θ (°)	18.0	20.4	11.4	14.1	25.6	29.4	16.1	16.3

Table 7.2: Mean width $\langle L\rangle$, thickness $\langle l_1\rangle$, thickness $\langle l_2\rangle$, and inclination angle $\langle\theta\rangle$ of fibre cross sections for various forming, pressing and drying conditions (F and P stand resp. for free and in-plane drying conditions), and related standard deviations or normalised standard deviation of such parameters.

specimens obtained using low, resp. high, pressing conditions. Fig. 7.6(e) and 7.6(f) are similar for the in-plane orientated specimens. The pronounced peaks of the obtained symmetric distributions centred around 0° show that the major part of the fibre segments are predominantly lying within the plane of the sheet or close to that plane, *i.e.* $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$, which is also the main plane of the images. Nonetheless, it is interesting to observe that the alignment of the fibre segment centrelines is more pronounced for in-plane drying conditions compared to free drying conditions as the standard deviation of the angle to the sheet plane Ψ_2 diminishes in that case (see Tab. 7.1) whatever the orientation of the specimens.

7.5.2 Fibre cross sections

Width - Figs. 7.7(a,b), reps. Figs. 7.8(a,b), show the fibre width distribution for low and high pressing conditions as well as for free and in-plane constrained drying conditions of in-plane isotropic, resp. in-plane orientated specimens. For in-plane isotropic specimens, the fibre width distributions are visually shifted towards higher values when increasing the wet pressing, whatever the drying conditions. For in-plane orientated specimens, the same tendency

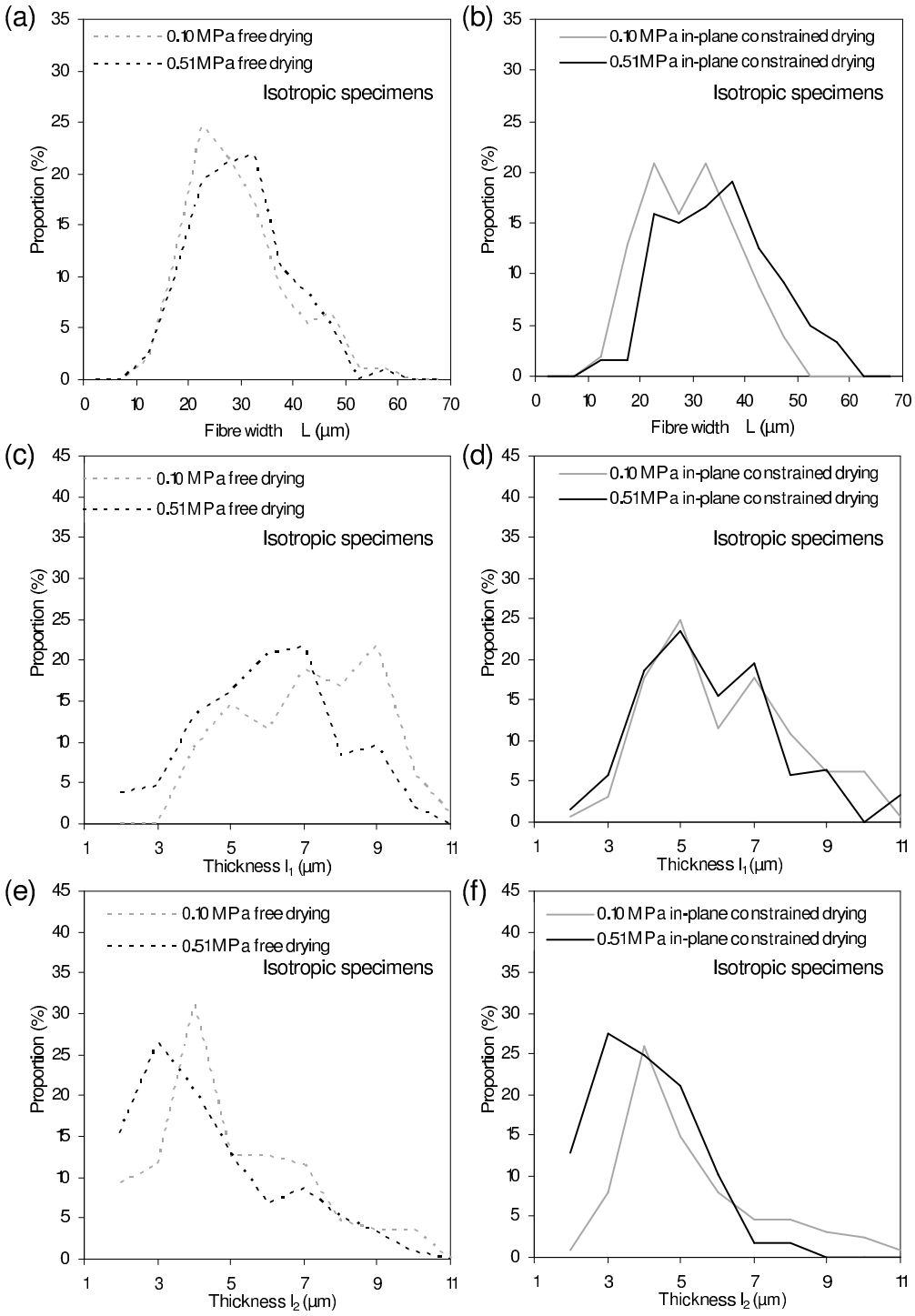


Figure 7.7: Distributions of the fibre (a,b) width L, (c,d) thickness l_1 and (e,f) thickness l_2 of the fibre cross sections comparing packing stress conditions for a given drying method in the case of isotropic specimens.The interval size for plotting frequency distributions is set to 5 μm for L, to 1 μm for l_1 and l_2.

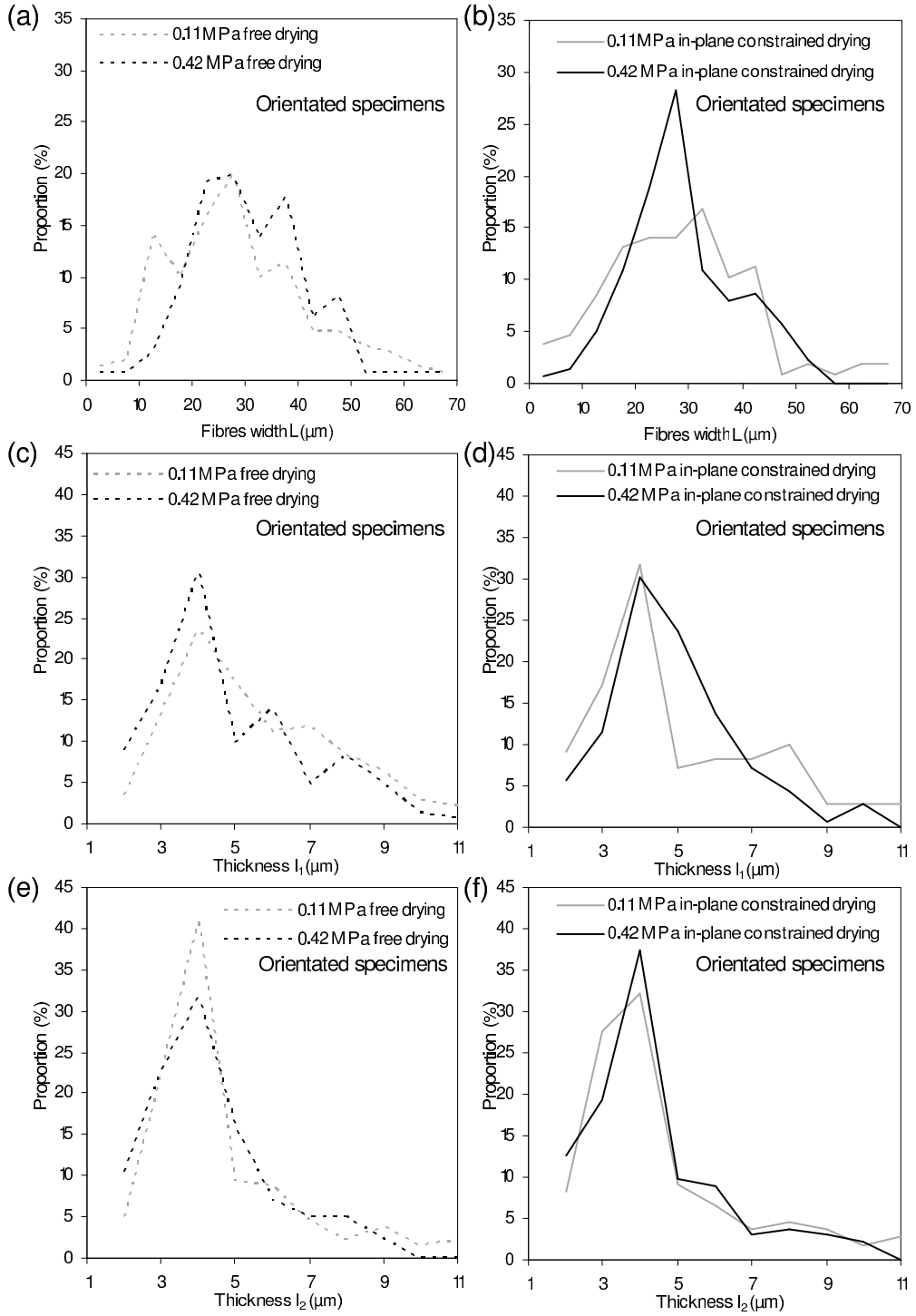


Figure 7.8: Distributions of the fibre (a,b) width L, (c,d) thickness l_1 and (e,f) thickness l_2 of the fibre cross sections comparing packing stress conditions for a given drying method in the case of orientated specimens.

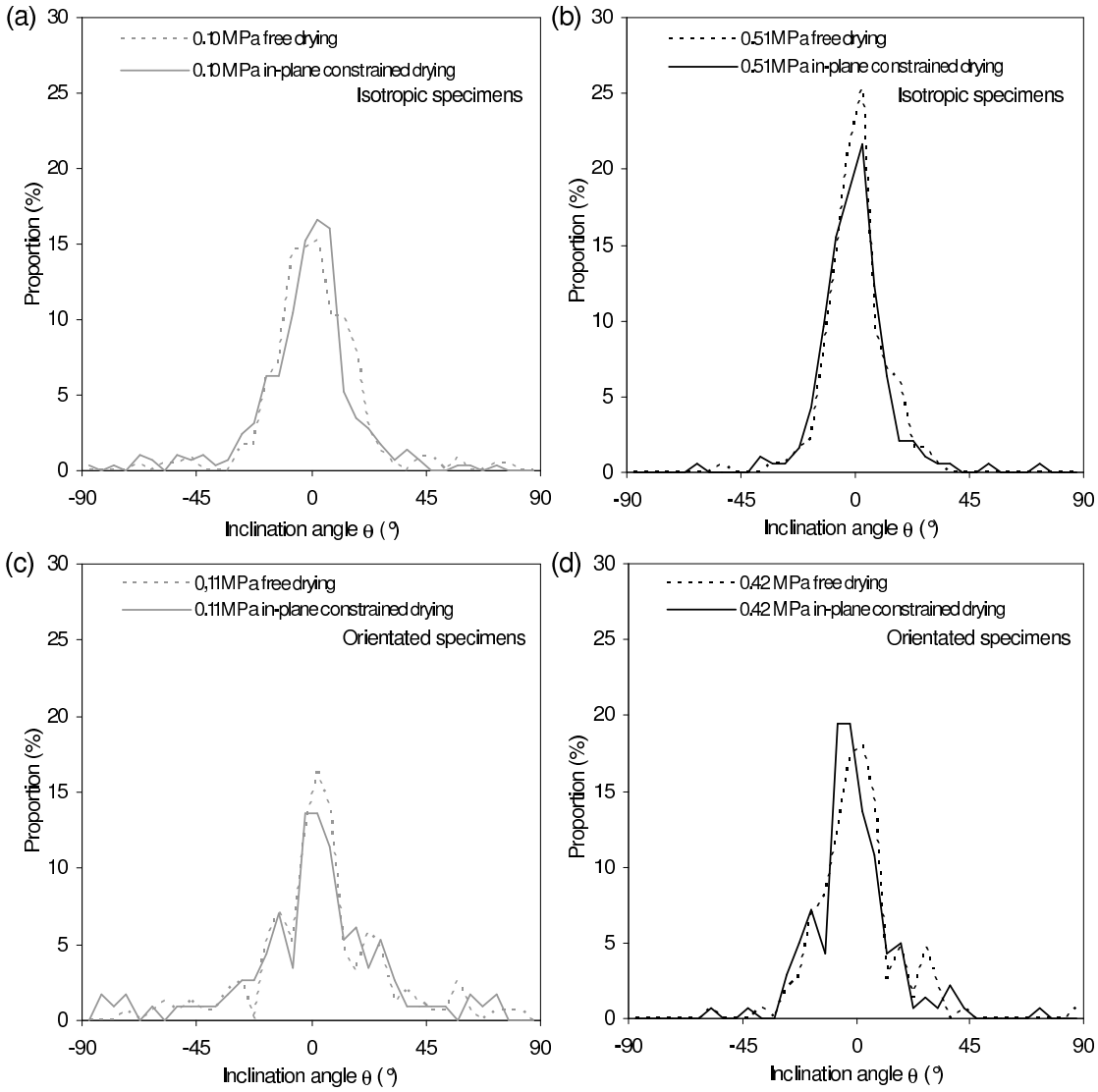


Figure 7.9: Distribution of the inclination angle θ of the fibre cross sections comparing drying conditions for low (a,c) and high (b,d) pressing conditions in both cases of (a,b) isotropic and (c,d) orientated specimens. The interval size for plotting frequency distributions is set to 5°.

is observed for freely dried specimens. Instead, Fig. 7.8(b) obtained for orientated in-plane constrained drying reveals a pronounced peak for the fibre width distribution appearing for the highest pressing condition of 0.42 MPa.
Data reported in Tab. 7.2 for the mean width $\langle L \rangle$ and the ratio of the standard deviation to the mean fibre width $\sigma_L / \langle L \rangle$ are also illustrative of the influence of the wet pressing, drying conditions and specimen orientation on the width of fibres within the fibrous network.
For in-plane isotropic and freely dried specimens, there is a weak increase of the mean fibre width $\langle L \rangle$ when increasing the pressing conditions: a maximum 18% increase for in-plane isotropic specimens dried under constraint could be recorded between the lowest and highest tested packing stresses. For in-plane orientated freely dried specimens, similar trends are observed for the mean fibre width with the wet pressing increase, whereas this is not the case for the mean fibre width of in-plane orientated specimens dried under constraint.
The ratio $\sigma_L / \langle L \rangle$ depicting the scattering of the fibre width gives much clearer insights on the evolution of the influence of the wet pressing. For both isotropic and orientated specimens, and all drying conditions, a decrease of this ratio is observed with the wet pressing increase. This reveals an homogenisation process of this property.
Comparing in-plane isotropic with orientated specimens shows that their mean fibre width is similar. However, the ratio of the standard deviation to the mean fibre width is pretty larger for orientated specimens, whatever the pressing and drying conditions. This trend is easily observable for both equivalent low pressing conditions for in-plane isotropic specimens (0.10 MPa) and orientated specimens (0.11 MPa).
The influence of the drying conditions on the ratio of the standard deviation is not obvious. For isotropic specimens, there may appear a slight tendency to homogenise this ratio. But such trend is not observed for orientated specimens, especially for the lowest pressing condition.

Thickness l_1 - Figs. 7.7(c,d) and Figs. 7.8(c,d) illustrate that there is a clear decrease of l_1 induced by the increase of wet pressing except for the orientated specimens dried under constraint for which there is no marked effect. Such observations are confirmed by the evolution of the mean values $\langle l_1 \rangle$ given in Tab. 7.2. At a given wet pressing condition, there is an effect of the drying conditions on $\langle l_1 \rangle$: typically this value is lower for in-plane constrained drying than for free drying. Such effect is less pronounced for the highest wet pressing conditions and tends to disappear in the case of orientated specimens. $\langle l_1 \rangle$ is lower for orientated specimens than for isotropic specimens. The ratio σ_{l_1} / l_1 is higher for orientated specimens than for isotropic ones, which reveals a higher heterogeneity of this fibre property related to the network fibre orientation. Further, no clear trend on the evolution of the ratio σ_{l_1} / l_1 is observed for the tested wet pressing and drying conditions.

Thickness l_2 - The wet pressing tends to decrease the thickness l_2 of the fibres as revealed

in Figs. 7.7(e,f) and Figs.7.8(e,f) and in Tab. 7.2 by the mean values $\langle l_2 \rangle$ and the ratios $\sigma_{l_2}/\langle l_2 \rangle$ which tend to decrease when increasing the wet pressing at given drying conditions. The effect of drying conditions on l_2 is not obvious for in-plane isotropic specimens, whereas in-plane constrained drying homogenises this parameter as revealed by the decrease of $\sigma_{l_2}/\langle l_2 \rangle$ for orientated specimens. This trend also suggests more heterogeneity in the case of orientated specimens compared to in-plane isotropic specimens.

Inclination angle θ - Figs. 7.9(a,b,c,d) show the distribution of the inclination angle θ of the major axis of the fibre cross section. These figures show that the major axis is mostly parallel to the plane of the sheet.
In Tab. 7.2, note that the mean values $\langle \theta \rangle$ can be slightly different from zero. This effect is simply related to a slight inclination of the main plane of the paper specimen with respect to the X-ray microtomography $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ frame. This misalignment was very limited.
More interestingly, note that the angle distributions are quite symmetric with respect to the mean values of θ. The peaks of the distributions are higher in the case of the high pressings compared to the low pressings (see also the diminution of the standard deviation of θ in Tab. 7.2). The packing stress σ_0 thus tends to reduce the inclination angle of the fibre cross sections. Their main axes are more parallel to the main plane of the specimens when increasing the wet pressing indicating an homogenisation of this property.
Besides, in-plane constrained drying seems to slightly increase the heterogeneity of this property compared to free drying. Tab. 7.2 also shows a higher standard deviation in the case of orientated specimens which indicates a more heterogeneous inclination angle distribution than for isotropic specimens.

7.5.3 Fibre-fibre contacts

Distance between contacts - Fig. 7.10(a) depicts the influence of the number of picked contacts on the shape of the distributions of the inter bond distance Δs. For a relatively low number of picked contacts, the distributions astonishingly appears to be rather stable. The stabilisation is better quantified in the graph for the mean and standard deviation of Δs given in Fig. 7.10(b), where a value of about 60 contacts seems to be sufficient to obtain a representative relevant information.
Figs. 7.11(a,b) and Figs. 7.11(c,d) show the distributions Δs for low and high pressing conditions of isotropic and orientated specimens, respectively. The distributions for isotropic and anisotropic samples have a quite similar shape whatever the unit operation conditions even if the appearance of the distributions obtained for orientated samples exhibits differences in their shape even if the range of values for Δs is comparable. Tab. 7.3 shows that anisotropic papers exhibit an increased mean inter bond distance compared to isotropic ones at comparable pressing and drying conditions. For both isotropic and anisotropic papers, the increase

Formation	Isotropic				Orientated			
Packing stress (MPa)	0.10		0.51		0.11		0.42	
Drying conditions	F	P	F	P	F	P	F	P
Mean inter bond distance $\langle \Delta s \rangle$ (μm)	-	35.8	20.7	30.6	42.8	49.7	30.3	34.0
Standard deviation $\sigma_{\Delta s}$ (μm)	-	21.8	15.9	23.1	42.1	28.2	19.9	19.6
$\sigma_{\Delta s}/\langle \Delta s \rangle$	-	61%	77%	75%	98%	57%	66%	58%
Median (μm)	-	42.0	27.3	43.4	60.1	54.2	37.0	41.6
Mean bonding degree ratio $\langle l_i/L \rangle$ (%)	-	31	42	41	29	29	34	38
Standard deviation $\sigma_{l_i/L}$ (%)	-	26	25	32	23	23	26	32
$\sigma_{l_i/L}/\langle l_i/L \rangle$	-	84%	60%	78%	79%	79%	76%	84%
Median (%)	-	52.2	56.2	59.1	42.6	39.4	47.2	55.2
Mean bond surface area $\langle S \rangle$ (μm^2)	-	375	385	483	260	426	419	590
Standard deviation σ_S (μm^2)	-	466	596	1111	378	591	604	960
$\sigma_S/\langle S \rangle$	-	124%	155%	230%	145%	139%	144%	163%
Median (μm^2)	-	593	519	611	599	775	605	718

Table 7.3: Mean distance between the centres of two consecutive bonds $\langle \Delta s \rangle$, ratio between bonded width and fibre width $\langle l_i/L \rangle$ and surface of bonds $\langle S \rangle$ for various forming, pressing and drying conditions (F and P stand resp. for free and in-plane drying conditions), and related standard deviations, normalised standard deviation and median of such parameters.

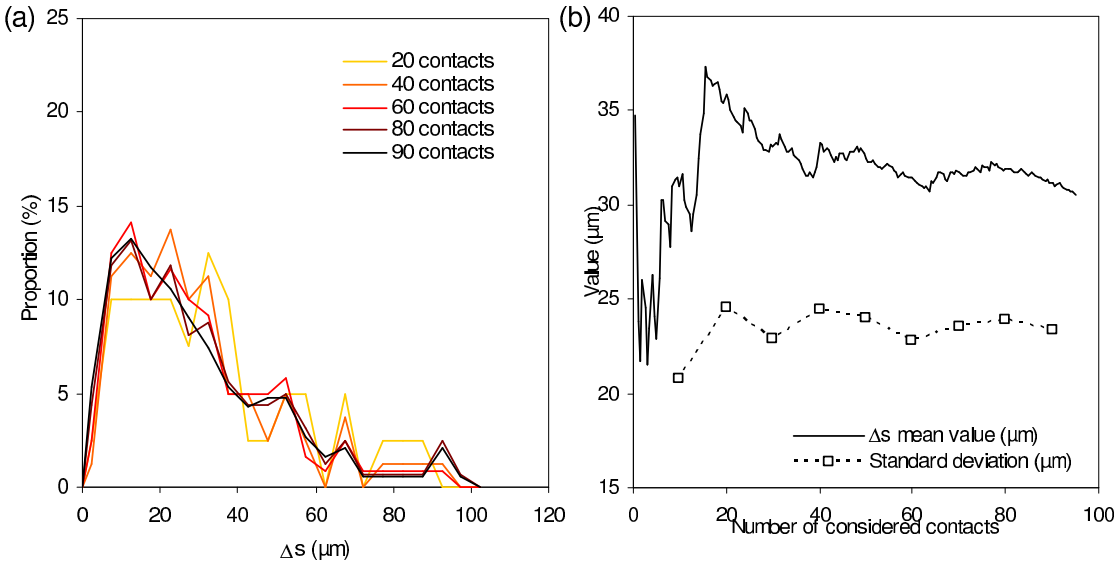


Figure 7.10: (a) Distributions of the inter bond distances Δs as a function of the number of randomly picked contacts. (b) Mean values and standard deviations of the same distributions as a function the number of randomly picked contacts. These measurements were performed within a scanned volume of 140 μm × 140 μm × t for isotropic in-plane constrained paper subjected to a packing stress of 0.51 MPa.

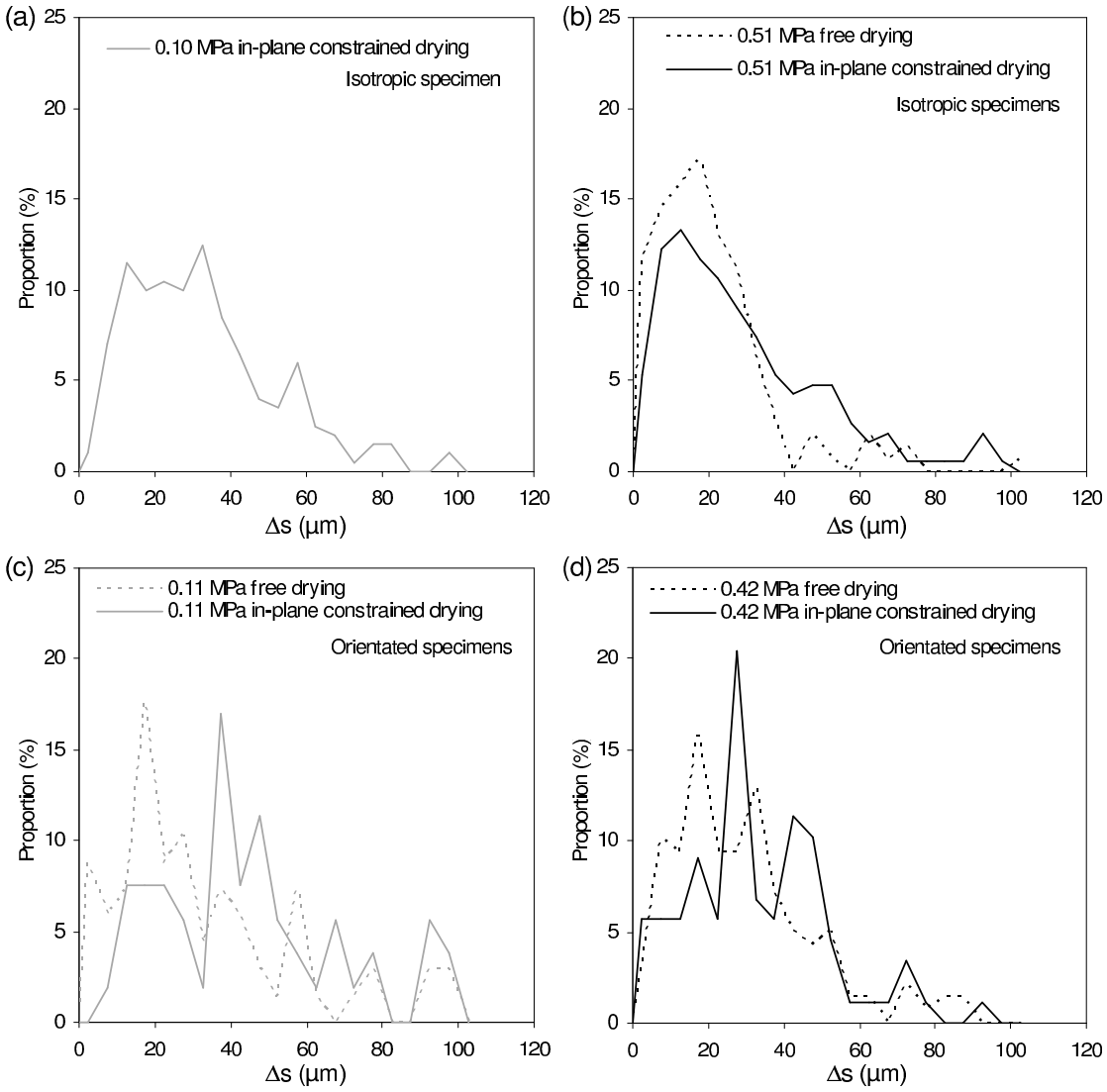


Figure 7.11: Distributions of the distance Δs between the centres of bonds in the case of (a,b) isotropic specimens and of (c,d) orientated specimens comparing the drying conditions for low (a,c) and high (b,d) pressing conditions. The interval size for plotting frequency distributions is set to 5 μm.

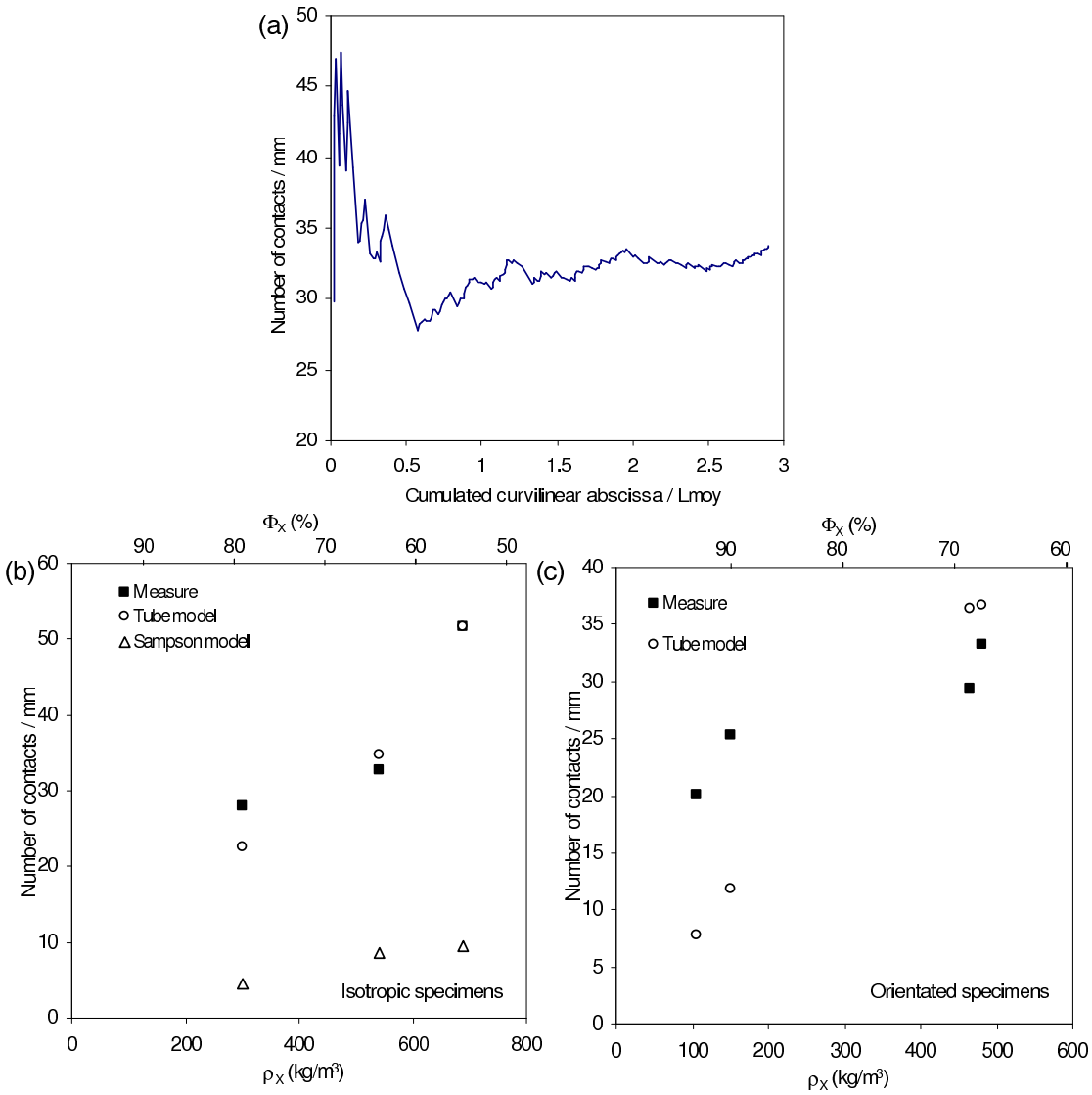


Figure 7.12: (a) Experimental number of contacts per unit length as a function of the cumulated curvilinear abscissa normalised by the mean length of the fibres. These measurements were performed within a scanned volume of 140 μm × 140 μm × t for isotropic in-plane constrained paper subjected to a packing stress of 0.10 MPa. Comparison of the number of contacts per unit length experimentally measured and assessed using the tube model and Sampson's approach for in-plane isotropic specimens (b) and orientated specimens (c).

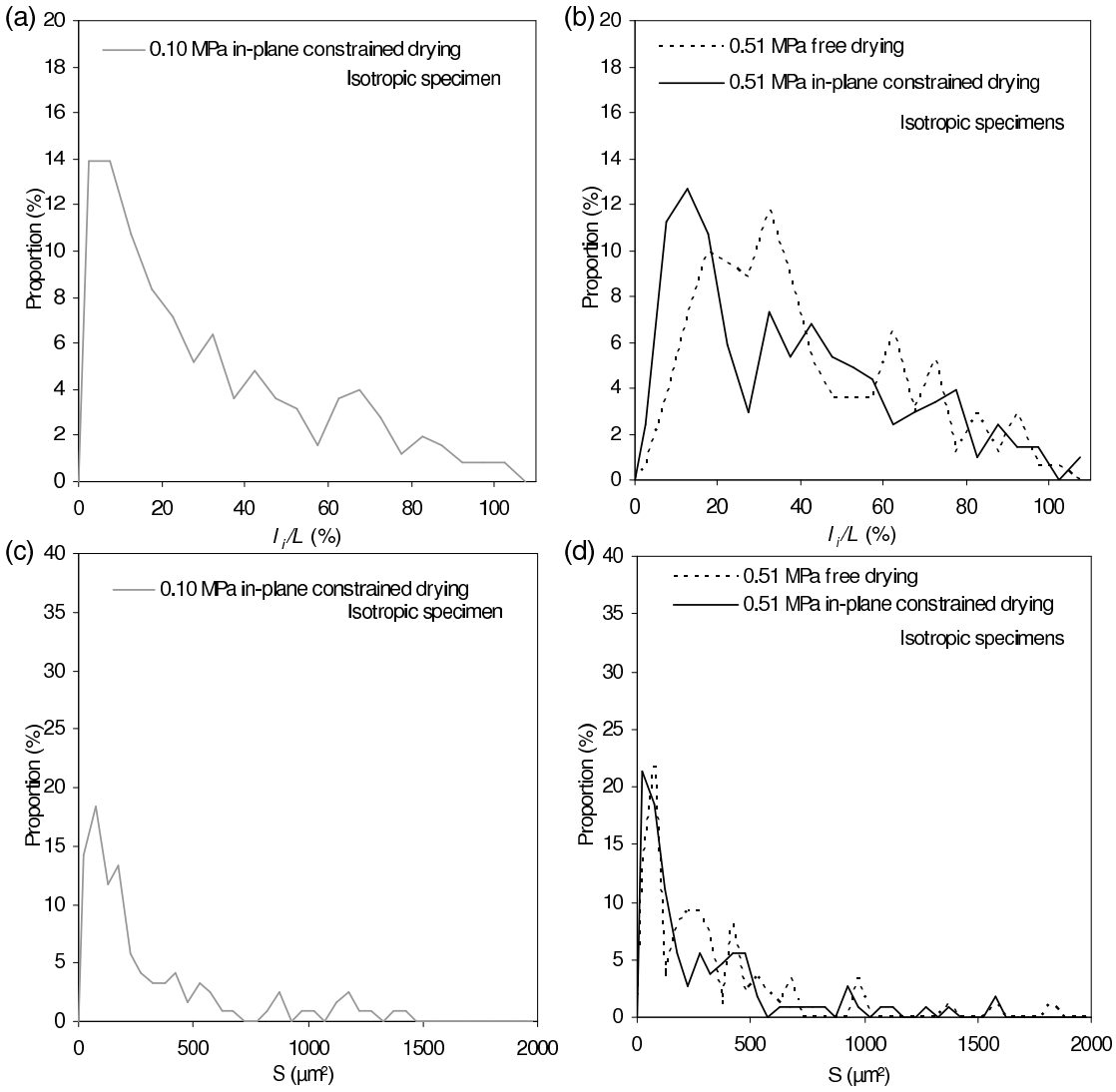


Figure 7.13: Distributions of (a,b) the bonding degree ratio l_i/L, and (c,d) the bond surface area S comparing the drying conditions for low (a,c) and high (b,d) pressing conditions in the case of isotropic specimens.The interval size for plotting frequency distributions is set to 5% for l_i/L and 50 μm^2 for S.

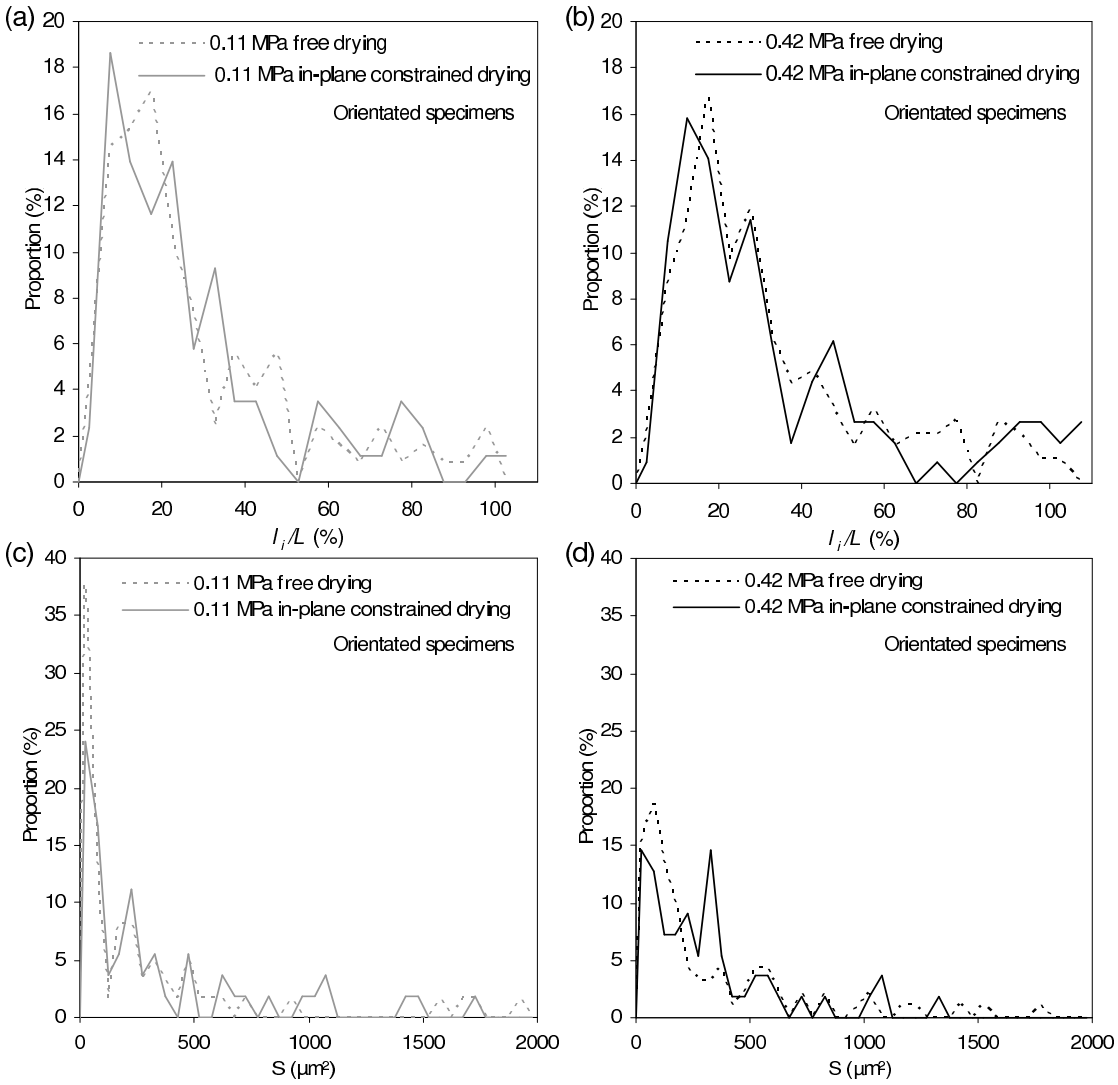


Figure 7.14: Distributions of (a,b) the bonding degree ratio l_i/L, and (c,d) the bond surface area S comparing the drying conditions for low (a,c) and high (b,d) pressing conditions in the case of orientated specimens.The interval size for plotting frequency distributions is set 5% for l_i/L and 50 μm^2 for S.

in the wet pressing is related to a decrease of $\langle \Delta s \rangle$ at given drying conditions. The median values of the obtained distributions for isotropic papers are not affected by the wet pressing conditions, whereas for anisotropic papers the increase in wet pressing is related to a general shift of the inter bond distance towards lower values. This reveals that the shape of the distributions is not largely affected by the increase of wet pressing in the case of isotropic papers, whereas the contrary effect occurs for anisotropic papers. Thus, there may be a larger microstructural change induced by wet pressing for in-plane orientated papers than for isotropic papers. For isotropic papers, a wet pressing increase seems to induce a largest heterogeneity for Δs as revealed by the increase of the ratio $\sigma_{\Delta s}/\langle \Delta s \rangle$ when increasing the wet pressing. The contrary effect is observable for orientated papers.
Several possible microstructural micromechanisms may be at the origin of such evolution: the change in the inclination angle of the fibre cross sections (see Tab. 7.2) and the increase of the number of fibre-fibre bonds both that may be preferably induced by wet pressing. The influence of the drying conditions may be observed for the highest pressing conditions for both in-plane isotropic and orientated papers. In-plane constrained drying conditions seem to increase the inter bond distance Δs compared to the freely dried conditions. The in-plane drying conditions may possibly strengthen the inter bond segments, whereas freely drying conditions would allow a pronounced shrinkage of the inter bond segments. Note that the effect may be not significant as for the lowest pressing condition for orientated papers, this trend is not confirmed.
It is interesting to note that the mean inter bond distance is of the same order as the mean fibre width depicted in Tab. 7.2 for all tested papers. This reveals that such fibrous microstructures are highly connected despite the rather low grammage and density of the tested model papers.

Mean number of contacts per fibre - Using the previous data for the mean inter bond distance, we have estimated the mean number of contacts per unit length of fibre. In Fig. 7.12(a) the number of contacts per unit length is shown as a function of the normalised cumulated curvilinear abscissa calculated by randomly summing all the inter fibre bond distances measured along all examined fibre segments within a scanned volume. The method delivers a stabilised number of contacts per unit length (roughly equal to 30 in the present case) is reached for a normalised cumulated curvilinear abscissa roughly equal to one, *i.e.* corresponding to a mean fibre length L_{moy}. This result is interesting and was systematically recorded for the studied microstructures. It shows that a representative number of contacts can be determined even when using volumes of fibrous networks having a limited size. This results should be further confirmed for other fibrous media. If the cumulated length of fibres or fibre segments within this volume is equal to the mean fibre length.
Figs. 7.12(b) and 7.12(c) show the evolution of the experimental mean number of contacts per unit length of fibre for all scanned specimens with respect to their density ρ_X or porosity

ϕ_X. The effect of the increase of the density is clear: the number of contacts per unit length increases from about 85 % (resp. 60 %) for isotropic (resp. orientated) specimens within the investigated range of ϕ_X. There are few similar results in the literature showing the influence of the paper density on the number of contacts per fibre (or per unit fibre length). For in-plane isotropic laboratory papers, Batchelor et al. [8] showed results of the same nature obtained using a cross-sectional grinding technique. But for orientated papers, such results acquired using X-ray tomography images are original to the knowledge of the authors.

Bonding degree ratio - The distributions of the bonding degree ratio l_i/L are plotted in Figs. 7.13(c,d) and Figs. 7.14(c,d) for low and high pressing conditions of isotropic, respectively orientated specimens. All distributions have quite similar shapes and clearly show that the major part of the bonds between fibres are partial whatever the unit operation conditions (mainly $l_i/L < 100\%$)(Note that the fibre width was measured in one position along the fibre centreline so that few values can be greater than 100 %). The most important and original result is emphasised in Tab. 7.3): the mean bond degree ratio is low, *i.e.* between ≈ 30 and 40 % whatever the investigated microstrucure. The pressing conditions have nonetheless a clear influence on l_i/L , whatever the drying conditions, as shown by the increase of $\langle l_i/L \rangle$ with the increase of σ_0. The effect of the drying conditions is noticeable for the highest pressing conditions as there is an increase of the scattering coefficient $\sigma_{l_i/L}/\langle l_i/L \rangle$ for the in-plane constrained drying compared to the free drying. This ratio is equal to 60 % for freely-dried in-plane isotropic papers pressed at 0.51 MPa, whereas it is equal to 78 % for in-plane constrained dried papers. Thus, the in-plane constrained drying condition would have a tendency to increase the heterogeneity of the geometry of bonds. The effect of wet pressing on the heterogeneity of the bond degree ratio is unclear as for isotropic papers a slight decrease of the scattering coefficient $\sigma_{l_i/L}/\langle l_i/L \rangle$ is observed, whereas the opposite phenomenon arises for anisotropic papers.

Bond surface area - Figs. 7.13(e,f) and Figs. 7.14(e,f) show the distributions of the bond surface area S for low and high pressing conditions of isotropic and orientated specimens. Note the calculations of this parameter was improved with respect to a previous study by [5] as the number of scrutinised bonds was here increased. Consequently, for similar papers, a slight difference in these measurements can be observed. Nonetheless, the previous observed trends are still the same, *i.e.* an increase of S with σ_0. The bond surface area ranges below ≈ 2000 μm^2 as shown in these figures. The mean values of the bond surface areas given in Tab. 7.3 are close for papers produced using similar pressing and drying conditions. Nonetheless the median values of the bond surface area given in Tab. 7.3 are greater for orientated papers compared to isotropic papers. This indicates there is an increase of bonds having a large surface in orientated papers. Note also that this parameter exhibits a pronounced scattering $\sigma_S/\langle S \rangle$ whatever the tested paper. The increase of the bond surface area S with in-

creasing the wet pressing is quite obvious for both in-plane isotropic and orientated papers (see the mean values of S in Tab. 7.3). Further the in-plane constrained drying had the effect to increase the bond surface area compared to the free drying as shown in Tab. 7.3. The cause of this phenomenon is not obvious when considering the low variations due to the drying conditions for the bonding degree ratio presented above. But one has also to consider that the fibre width tends to increase with the in-plane constrained drying conditions compared to the free drying conditions whatever formation or wet pressing conditions as it was also previously discussed.

7.6 Discussion

7.6.1 Formation of paper microstructures

To our knowledge, there are rather few studies delivering such a set of parameters on the fibres' morphology and fibre-fibre contacts and bonds within papers' microstructures by direct observations. Among former studies let us quote the studies of Page et al. [8] for the bond surface and inter distance and He et al. [19] for the fibre morphology. Both studies relied on an extensive and fine microscopy work. The current analysis was here made possible by the use of X-ray microtomography three-dimensional images.
As briefly discussed below, the present results are in line with those of former studies and even contribute to enrich and complement them were also tested, *e.g.* the fibre orientation.
The current analysis provides a better insight on the contribution of the processing parameters to the formation of papers' microstructures and more particularly about the (i) collapse of fibre cross sections, (ii) shape of fibres' centrelines and orientation and (iii) the fibre-to-fibre bonds.
The development of a ribbon-like shape for the fibres in papers' microstructures is accompanied with the collapse of fibres' cross sections. The increase of wet pressing has a clear effect on the acquisition of such morphological features as increasing wet pressing results in an increase of the fibre cross section width and in an alignment of the cross section main axis parallel to the sheet plane. The influence of drying conditions is less consistent: the shrinkage of the cross section lateral thickness seems to more pronounced for constrained drying conditions than for free drying conditions. The influence of formation is also weak but interestingly reveals that the fibre cross section dimensions exhibit a higher discrepancy for in-plane orientated fibrous networks than for in-plane isotropic ones. Note that the collapse of fibre cross sections of in-plane isotropic networks is also non-uniform as previously observed by He et al. [19]. These authors attributed this effect to an uneven pressure transfer due to the non-uniform structure of networks and to the discrepancy in fibre collapsibility. For in-plane orientated networks, the present observation might complete this former result and indicate that there is a transfer of pressure in the fibrous networks that is all the more

uneven as fibres have an in-plane preferential orientation.
Fibres within networks can undergo torsion, bending, extension or shearing during the network's formation. Here the observations of the fibre cross section inclination angle θ can be associated with the twist of fibres induced during the formation of papers. Increasing wet pressing reduces the twist and its heterogeneity. Likewise, the twist of fibres seem to be more heterogeneous in in-plane orientated networks than in in-plane isotropic ones. In-plane constrained drying seems also likely to slightly restrain the fibre bending compared to free drying conditions (as revealed by the angle Ψ_2). These two observations give a partial insight on how fibres are constrained during drying. But note that these effects are not marked.
The geometry of fibre-to-fibre bonds within fibrous networks is crucial for the predictions of physical and mechanical properties of fibrous networks. The observation that the bonding between contacting fibres is incomplete, as shown by the bonding degree ratio l_i/L, is consistent with the observations made in the impressive work carried out by Page et al. [8] on fibre bonding. Further, the estimated bonding areas are also consistent with those former observations. The most influential processing parameters are the wet pressing increase and the in-plane fibre orientation: both are related to a tendency to increase the degree of bonding. It seems likely that constrained drying conditions have also a slight beneficial effect for the increase of the degree of bonding.

7.6.2 Weibull distributions

Due to their particular shape, we chose to fit the experimental distributions describing the morphology of the fibres and bonds, *i.e.* L, l_1, l_2, Δs, l_i/L and S by Weibull distributions for which the probability density function and the cumulative distribution function respectively write:

$$\forall x \geq 0, f(x) = \frac{c}{b}\left(\frac{x}{b}\right)^{c-1} \exp\left(-\left(\frac{x}{b}\right)^{c}\right) \text{ for } x \geq 0, \tag{7.7}$$

and

$$F(x) = 1 - \exp\left(-\left(\frac{x}{b}\right)^{c}\right), \tag{7.8}$$

with $b > 0$ and $c > 0$.
In order to determine the scale parameter b and the shape parameter c, two methods were followed. The first consisted of a least-squares regression technique for both b and c parameters, whereas the second method consisted of imposing the parameter b as equal to the experimental mean value of the distributions and then determining c by a least-squares method. Corresponding results of both fitting techniques for all morphological parameters are given in Tab. 7.4 where b_1 and c_1 correspond to the Weibull's parameters of the first method and b_2 and c_2 are the parameters determined by the second method.

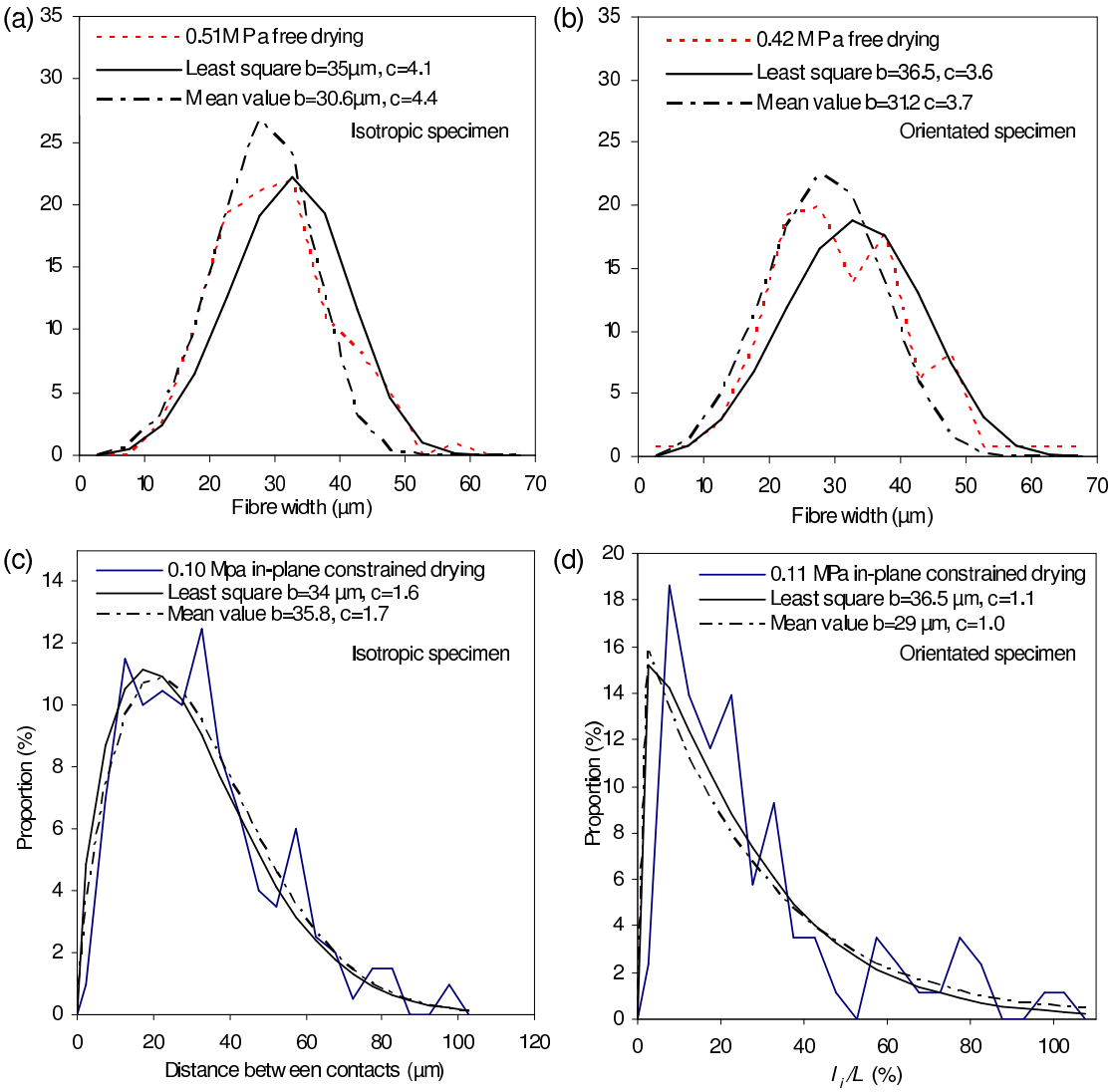


Figure 7.15: Weibull distributions for the fibre width (a) and (b), distance between contacts (c) and the bonding degree ratio (d).

Formation		Isotropic				Orientated			
Packing stress (MPa)		0.10		0.51		0.11		0.42	
Drying conditions		F	P	F	P	F	P	F	P
L	b_1 (μm)	34.0	35.0	35.0	41.0	34.5	34.5	36.5	34.0
	c_1	3.8	3.9	4.1	4.0	2.6	2.5	3.6	3.4
	$b_2 = \langle L \rangle$ (μm)	29.8	30.6	30.6	36.1	29.1	30.0	31.2	29.3
	c_2	4.4	4.0	4.4	4.2	2.6	2.5	3.7	3.8
l_1	b_1 (μm)	7.4	6.2	6.2	5.8	5.6	5.0	4.8	4.8
	c_1	3.9	3.1	3.3	3.2	2.4	5.1	2.2	3.0
	$b_2 = \langle l_1 \rangle$ (μm)	7.7	6.8	6.5	6.3	5.8	5.2	4.8	4.9
	c_2	3.8	2.8	3.2	2.9	2.4	1.9	2.2	2.9
l_2	b_1 (μm)	5.0	5.1	4.3	3.9	4.3	4.3	4.2	4.1
	c_1	2.3	2.7	1.9	2.8	2.6	2.1	2.5	2.4
	$b_2 = \langle l_2 \rangle$ (μm)	5.6	5.8	5.0	4.5	5.2	4.8	4.4	4.4
	c_2	2.2	2.4	1.8	2.5	2.1	1.9	2.4	2.3
Δs	b_1 (μm)	-	34.0	18.5	28.5	32.0	47.5	30.0	34.0
	c_1	-	1.6	1.3	1.2	1.2	1.8	1.5	1.8
	$b_2 = \langle \Delta s \rangle$ (μm)	-	35.8	20.7	30.6	42.8	49.7	30.3	34.0
	c_2	-	1.7	1.4	1.4	1.4	2.0	1.5	1.8
l_i/L	b_1 (%)	-	30	43	38	27	27	33	33
	c_1	-	1.0	1.6	1.2	1.1	1.1	1.2	1
	$b_2 = \langle l_i/L \rangle$ (%)	-	31	42	41	29	29	34	38
	c_2	-	1.1	1.5	1.3	1.0	1.0	1.3	1.3
S	b_1 (μm^2)	-	238	264	227	155	271	248	294
	c_1	-	0.7	0.9	0.7	0.5	0.7	0.7	1.0
	$b_2 = \langle S \rangle$ (μm^2)	-	375	385	483	260	426	419	590
	c_2	-	0.9	1.0	0.9	0.8	0.8	0.9	1.1

Table 7.4: Parameters b and c of the Weibull distribution following two determination methods for L, l_1, l_2, Δs, l_i/L and S for various forming, pressing and drying conditions (F and P stand resp. for free and in-plane drying conditions).

Some examples of fitted distributions are shown in Figs. 7.15(a,b). Both fitting methods give a good approximation of the experimental distributions for all parameters, except for the fibre width L. In the latter case, the least-squares method indeed seems to induce a shift of the mean fibre width that is quite important (≈ 5 μm). It is striking but interesting that the Weibull distribution which requires only two fitting parameters allows a fairly correct description of the considered morphological parameters. If one wishes to develop an automatic generator of fibrous microstructures based on the use of Weibull distributions, it would be necessary to determine the influence of the papermaking unit operations on the evolution of b and c and then to complete Tab. 7.4, which would nonetheless required a huge amount of work without any automatic image analysis procedures (currently developed).

7.6.3 Assessment of the number of fibre-fibre contacts

Various models of the literature aim at predicting the number of fibre-fibre contacts per fibre within a fibrous network. Here we have tried to compare the predictions of two models with the previous experimental measurements. One of the simplest model is the tube model [9] widely used in the fields of fibre suspensions and composite materials [30, 29, 5, 21, 2]. This model assumes that fibres are straight, homogeneously distributed in space, and that the fibres can overlap (soft core assumption). It delivers an estimation of the average number of fibre-fibre contacts $\bar{n}$. In the case of fibres with identical elliptical cross sections of mean axis L, identical length λ and with planar fibre orientation (θ=0), $\bar{n}$ can be estimated from the knowledge of the porosity Φ and orientation:

$$\bar{n} = 4\alpha(1-\Phi)\left(\frac{2}{\pi}\frac{\lambda}{a}\phi_1 + \phi_2 + 1\right). \tag{7.9}$$

where αL is the radius of the tube circumscribing a test fibre. α was set to 2 to best fit experimental data. The parameters Φ, λ and d_{max} were chosen as follows: $\Phi = \phi_X$, $\lambda = L_{moy}$ and $L = \langle L \rangle$. The functions ϕ_1 and ϕ_2 only depend on the fibre orientation and were estimated by the following discrete forms :

$$\phi_1 = \frac{1}{N^2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{k=1}^{N} \|\boldsymbol{p}_i \times \boldsymbol{p}_k\|, \tag{7.10}$$

and

$$\phi_2 = \frac{1}{N^2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{k=1}^{N} |\boldsymbol{p}_i.\boldsymbol{p}_k|, \tag{7.11}$$

where N is the number of considered fibres. For in-plane isotropic networks $\phi_1 = \phi_2 = 2/\pi$. The functions ϕ_1 and ϕ_2 were estimated on the basis of the measurements of fibre segments'

orientation.
Another statistical model developed by Sampson [6, 8] was also considered. This model is based on a statistical description of the geometry of random fibre networks where the fibre centres are distributed according to a Poisson process and fibre axes are uniformly distributed. This model predicts that the number of contacts per fibre (seen as rectangles of length λ and width ω) is given as

$$\bar{n} = \frac{\phi^*_{mp}}{\phi^{crit}_{2D}}, \tag{7.12}$$

The fractional contact area ϕ^*_{mp} is defined in [6] and corresponds to the upper bond of fibre surface in contact with other fibres. It is defined in [6] as follows:

$$\phi^*_{mp} = \frac{1}{n}\left((n-2)\phi_{mp} + \phi^*\right) \tag{7.13}$$

with

$$n = \frac{\beta\omega}{\delta \ln(1/\Phi)} \tag{7.14}$$

and

$$\phi_{mp} = \phi_{2D} + \phi^*. \tag{7.15}$$

The parameter n is the number of layers of a multiplanar network of rectangular fibres having a mass per unit length δ. The parameter β defines the mass per unit area of the network .
The following approximations for ϕ_{2D} and ϕ^* [6] were used:

$$\phi_{2D} \approx \Phi \ln\Phi(-\frac{1}{2} + \frac{2}{9}\ln\Phi - \frac{1}{16}(\ln\Phi)^2 + \frac{1}{75}(\ln\Phi)^3) \tag{7.16}$$

and

$$\phi^* \approx \Phi(1-\Phi)^2 \ln\Phi(-1 + \frac{\ln\Phi}{4} - \frac{(\ln\Phi)^2}{18} + \frac{(\ln\Phi)^3}{96} - \frac{(\ln\Phi)^4}{600}) \tag{7.17}$$

accounting for this latter expression of the correction given in [8].
Besides the parameter ϕ^{crit}_{2D} is the fractional contact area of a two dimensional network having a coverage $\bar{c} = \pi\omega/(2\lambda)$:

$$\phi^{crit}_{2D} = 1 - \frac{1 - e^{-\bar{c}}}{\bar{c}} \tag{7.18}$$

as defined by Batchelor et al. [8].
For calculations, the parameters of this model were set as follows: $\Phi = \Phi_X$, $\lambda = L_{moy}$, $\omega = \langle L \rangle$, $\delta = 3.7 \times 10^4$ g m^{-1}. The mass per unit area of the network was estimated from the knowledge of the network density and thickness measured using x-ray images.
Both model predictions were compared for in-plane isotropic papers with experimental measurments in Fig. 7.12(a) where the number of contacts was normalised by the average fibre length (L_{moy} = 2 mm). Only the tube model was compared to the experimental measurements for orientated specimens as it does seem that the Sampson's model was developed for in-plane anisotropic materials (this would be possible, see [31] but out of the scope of this study). For in-plane isotropic papers, the tube model well describes the experimental evolution of the number of fibre-fibre contacts per fibre. On the contrary the Sampson's model largely underestimates the number of contacts experimentally measured. This might appear astonishing, but Batchelor et al. [8] had already noticed such effect: it arises because the Sampson's model considers "full" contacts. To get rid of such problems these authors proposed to classify contacts into two groups: "partial" or "full" contacts. Note that there is certainly *'an element of subjectivity'* to this approach as pointed out by Sampson and Sirviö [33] who used a similar microscopy method as Batchelor et al. [8] to detect contacts in fibrous networks and were also confronted to the complexity of the shape of contacts. In the current study no distinction is made between "partial" and "full" contacts which might explain the observed difference in Fig. 7.12(a) between the Sampson's model and the experiments. If all contacts are considered whatever their morphology, the experimental results of Batchelor et al. [8] show interestingly similar estimations of the number of contacts for fibrous networks having equivalent densities as in the current work. This attempt to test the models' response for the prediction of the number of contacts highlights the need for a precise observation of the "real" geometry of the fibre-to-fibre contacts. This objective is not fulfilled yet, but systematic classification of the geometry of fibre-to-fibre contacts could come out from progress in analysis of three-dimensional x-ray images of the bonding zones. Otherwise there is a bias when trying to confront the predictive models for the number of contacts and the experiments.

7.6.4 Surface of fibre-fibre contacts: estimation of the Relative Bonded Area (RBA)

The Relative Bonded Area, noted RBA$_X$, within each studied x-ray microtomography sub-volume was estimated from the measurements of the fibre and fibre-fibre bond properties. To carry out such estimation, some assumptions on the fibre geometry were made. As explained earlier, the major axes of fibre cross sections are mostly lying within the plane of the paper sheets, see Figs. 7.9(a-d). This suggests that the available area for bonding on a fibre mainly occurs on the upper or lower sides of fibres. Noting s_{max} the maximum curvilinear abscissa that is scrutinised for the considered fibre i in the studied sub-volume and its mean

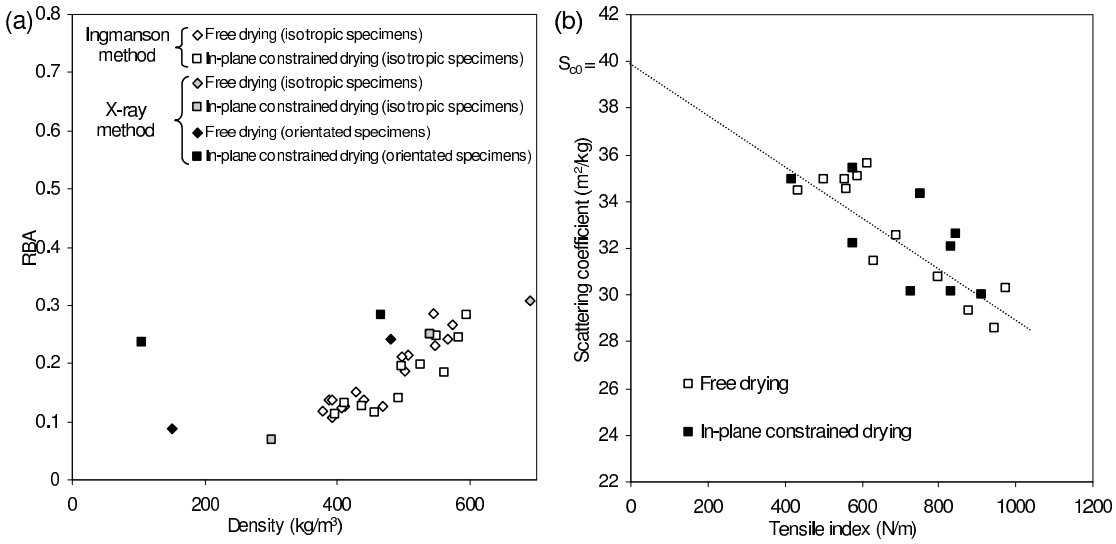


Figure 7.16: RBA values as a function of papers' density: (a) estimation through the use of x-ray microtomography data (in that case the density is the the effective density ρ_X) and the optical method by Ingmanson and Thode (desnity ρ_{app}). (b) Light scattering coefficient with respect to the tensile strength: experimental values and linear fit.

width $\langle L_i \rangle$, the total area of the fibre i available for bonding can be approximated as

$$A_{T_i} = 2 s_{max_i} \langle L_i \rangle. \tag{7.19}$$

Furthermore the bonding area S of each bond j was calculated for all the fibre-fibre bonds of each studied sub-volume. Then RBA_X of each studied sub-volume is thus simply calculated as follows:

$$RBA_X \approx \frac{\sum_{i=1}^{i=N} \sum_{j=1}^{j=\bar{n}} S_j^{(i)}}{\sum_{i=1}^{i=N} A_{T_i}}, \tag{7.20}$$

where N is the number of fibres.

Fig. 7.16(a) shows the evolution of RBA_X with ϕ_X. RBA_X ranges between approximately 0.1 to 0.3 for an (effective) density ranging between ≈ 100 kg m^{-3} to ≈ 700 kg m^{-3}. Note that the recorded values for RBA_X are higher for in-plane orientated papers than for in-plane isotropic ones. This result is consistent with the observation of the increased degree of bonding for in-plane anisotropic papers.

Our rough estimations are consistent with previous RBA values obtained by different experimentalists using various microscopy techniques: Page et al. [8] found a RBA value about 0.16 for unbeaten sulphite pulp handsheets (no mention of the paper density). Niskanen and Rajatora found 0.13 and 0.17 [17] for unbeaten or slightly beaten softwood kraft fibres. But these latter values are presumably low for the paper effective densities that are comprised between

662 kg m^{-3} to 860 kg m^{-3} [17, 6]. Our values are also in the same order as those reported by Yang et al. [34] who found RBA comprised between 0.3 and 0.5 for kraft pulp handsheets having densities ranging between 500 kg m^{-3} and 700 kg m^{-3}. Our RBA values also agree with those of Paavilainen [35]. Thus our results seem to be reliable even if rough assumptions were used for estimating the fibre and bond surfaces.
Furthermore, the estimation of the evolution of the RBA with the apparent density ρ_{app} using the classical optical method by Ingmanson and Thode [23] is also given in Fig. 7.16(a). For this method, the evolution of the scattering coefficient S_c is thought to be correlated to the evolution of the tensile strength T (see Fig. 7.16(b)). Then an extrapolation of $S_c(T = 0)$ delivers S_{c0} for a completely unbonded sheet and consequently the total surface of fibres. As underlined by Batchelor and He in several articles, particularly in [26], it might be difficult by using such method, to obtain a good extrapolation. Therefore, the method of Ingmanson and Thode [23] is most often questionable. Here, considering the data of Ingmanson and Thode for classified and unbeaten pulps, the chosen extrapolation was assumed to be linear, which gives an extrapolated value of $S_{c0} = 40$ m^2 kg^{-1}. In such estimation, no distinction was made between drying conditions. From the calculated value for S_{c0} and measured values for S_c, the RBA's of in-plane isotropic handsheets were obtained: see Fig. 7.16(a). The RBA shows globally a sharp increase with the apparent density for values over 400 kg m^{-3}. Below this density, the trend is less pronounced. Such result is in accordance with previous observations made by Ingmanson and Thode [23], for instance. The RBA values range between ≈ 0.1 and ≈ 0.3 for apparent densities ρ_{app} ranging between ≈ 400 kg m^{-3} to ≈ 600 kg m^{-3}. Hence the range of RBA values is similar for both methods. But there is also a shift along the density axis between both data series. Then comparing RBA values obtained from a microscopic method and data obtained from a macroscopic optical method would require specific corrections of the apparent density for instance.

7.7 Conclusion

The description of microstructural parameters of fibrous materials like papers remains difficult at the fibre and fibre-fibre bond scales. To overcome such difficulties, this study proposed an original approach based on three-dimensional X-ray microtomography images of paper fibrous networks made up of softwood classified pulp fibres. These papers were processed varying formation, wet pressing and drying conditions. The image analysis allow several descriptors of fibre and bond morphological properties to be measured. For fibres, descriptors as the fibre orientation, the geometry of the fibre cross sections and the inclination of the fibre cross sections were measured. For bonds, their inter-distance and the related number of contacts per unit fibre length as well as the morphology and surface of bonds were estimated.

- The results allow a better representation of the influence of papermaking operations on the formation of paper's microstructure, i.e. an estimation of the deformation mechanisms of fibres and bonds that are induced by these operations. Wet pressing was shown as the most important parameter for the morphology of fibres and bonds. Increasing the wet pressing packing stress induces an appreciable increased fibre content and collapse of the cross section of fibres; it aligns the main axis of fibre cross sections parallel to the paper plane. It also induces an increase of the number of bonds, the degree of bonding and fibre-to-fibre areas as well as to a decrease of the distance between contacts. The formation operation that governs the in-plane fibre orientation can also have an appreciable effect on both the morphology of fibres and bonds. For instance the dimensions or the inclination of fibre cross sections are more dispersed in in-plane anisotropic fibre networks than in in-plane isotropic networks. There are also more and larger bonds in anisotropic fibrous networks. The influence of drying conditions is less appreciable. This point is certainly related to the particular type of fibres used to produce model papers: fibres used in this study were not refined. A similar analysis performed with refined fibres might better reveal the influence of the drying conditions.

- The statistics of several properties related to the fibre and bond geometry seem to be well represented using Gaussian and Weibull-like distribution functions. Such result is interesting to test and to improve the accuracy of stochastic network generators that are representative of the complexity of papers' networks.

- It was importantly observed that measuring the number of contacts along fibres representing a cumulated length of 1.5 to 2 mm, i.e. the average fibre length, is enough to get a representative estimation of the number of contacts per fibre unit length within the studied fibre networks. This result is very important as it induces that the size of the Representative Elementary Volumes (REV) to be scrutinised to gain this particular descriptor is very limited.

Such findings also allow the validity of models for the number of contacts to be discussed. The tube model appears as relevant to estimate the number of contacts per fibre in in-plane isotropic fibrous networks although the model underestimates the number of contacts for low-density networks. For the highest density, predictions of the model are very close to the measurements. The discrepancy that is observed for low-density papers might be related to the curliness of fibres. On the contrary the Sampson's model underestimates the number of contacts per fibre of in-plane isotropic fibrous networks. This may be due to that there is no distinction in the experiments between "full" and "partial" bonds that should be anyway clearly define experimentally.
Finally, it should be emphasised that there are difficulties inherent to such type of analysis.

First difficulties are related to the quality of images and their processability: the easier the segmentation, the easier the measurement of microstructural parameters. Recent progress in x-ray image acquisition techniques will help improving drastically the quality of images and reducing segmentation problems. Further, the current study relies on a visual structural analysis of three-dimensional paper images. It is efficient albeit cumbersome. To perform routinely three-dimensional analyses of paper-like complex fibrous microstructures, progress in the development of advanced automatic computational algorithms for image interpretation has still to be performed. For fibrous networks, especially for wood pulp fibrous networks, some recent and encouraging progress was made: Viguié et al. [4] have developed algorithms which allow the automatic identification (number, position, morphology and geometry) of individual fibres and fibre-fibre bonds in low grammage model papers (15 g m^{-2}). Such advanced algorithms should be tested and further developed using the images of the studied model papers that are much denser.

Bibliography

[1] Sampson, W., Materials properties of paper as influenced by its fibrous architecture, Int. Mater. Rev., 54, 134–156 (2009).

[2] Alava M., Niskanen K., The physics of paper, Rep. Prog. Phys., 69, 669–723 (2006).

[3] Bloch J.-F., Rolland du Roscoat S., Three-dimensional structural analysis, 14th Fundamental Research Symposium, Oxford, pp. 599–664 (2009).

[4] 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, submitted in Comp. Sci. Technol. (2013).

[5] Marulier C., P.J.J. Dumont P.J.J., Orgéas L., Caillerie D., Rolland du Roscoat S., Towards 3D analysis of pulp fibre networks at the fibre and bond levels, Nordic Pulp and Paper Research Journal, 28(2), 245–255, 2012.

[6] Sampson, W., A model for fibre contact in planar random fibre networks, J. Mater. Sci., 39, 2775–2781 (2004).

[7] Eichhorn S.J., Sampson W.W., Statistical geometry of pores and statistics of porous nanofibrous assemblies, J. R. Soc. Interface, 2, 309–318, 2005.

[8] Batchelor, W.J., He, J., Sampson W.W., Inter-fibre contacts in random fibrous materials: experimental verification of theoretical dependence on porosity and fibre width, J. Mater. Sci., 41, 8377–8381 (2006).

[9] Toll S., Note: On the tube model for fiber suspensions, J. Rheol. 37, 123–125 (1993).

[10] Guiraud O., Orgéas L. Dumont, P.J.J., Rolland du Roscoat S., Microstructure and deformation micro-mechanisms of concentrated fiber bundle suspensions: an analysis combining X-ray microtomography and pull-out tests, J. Rheol., 56(3), pp. 593-623 (2012).

[11] Rolland du Roscoat, S., Decain, M., Thibault, X., Geindreau, G., Bloch, J.-F., Estimation of microstructural properties from synchrotron X-ray microtomography and determination of the REV in paper materials, Acta Mater.,55, 2841–2850 (2007).

[12] Luner P., Kärnä A.E.U, Donofrio C.P., Studies in Interfibre Bonding of Paper. The Use of Optical Bonded Area with High Yield Pulps, TAPPI J., 44(6), 409–414 (1961).

[13] Alexander S.D., Marton R., Effect of beating and wet pressing on fiber and sheet properties, Tappi, 51(6), 283–288 (1968).

[14] Salmén L., Fellers C., The nature of volume hygroexpansivity of paper, J. Pulp Paper Sci., 15(2), 63–65 (1989).

[15] Uesaka T., Moss C., Nanri Y., The characterization of hygroexpansivity in paper, International Paper Physics Conference Proceedings, TAPPI Press, Atlanta (GA), USA, 613–622 (1991).

[16] Leskelä M., Optical properties. In Paper Physics. Papermaking science and technology, Book 16, Paper Physics, Fapet Oy, Helsinki, Finland; 116–137 (1998).

[17] Niskanen K., Rajatora H., Statistical geomety of paper cross-sections, J. Pulp Pap. Sci., 28(7), 228–233 (2002).

[18] K. Niskanen, P. Kärenlampi, In-plane tensile properties, in Papermaking science and technology, Paper physics, Fapet Oy, Book 16, Chapter 5, Finland, 1998.

[19] He J., Batchelor W.J., Johnston R.E., The behavior of fibers in wet pressing, Tappi J., 2(12), 27–31 (2003).

[20] He J., Batchelor W.J., Johnston R.E., A microscopic study of fibre-fibre contacts in paper, Appita J., 57(4), 292–298 (2004).

[21] 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, Comp. Sci. Technol., 71, 480–488 (2011).

[22] 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, Compos. Part A-Appl. S., 39, 91–103 (2008).

[23] Ingmanson W. L., Thode E.F., Factors contributing to the strength of a sheet of paper, TAPPI J., 42(1), 83–93 (1959).

[24] Silvy J., Structural study of fiber networks: The cellulosic fiber case, Thèse de docteur d'état, Univ. Grenoble - Alpes (1980).

[25] T. Naito, Struture and structural anisotropy. In Handbook of Physical Testing of Paper, Volume 1, Second Edition, Revised and Expanded, Richard E. Mark, Charles C. Habeger, Jr., Jens Borch and M. Bruce Lyne (eds). Marcel Dekker, Inc.: New York, 2002; 901–1012.

[26] Batchelor W. J., He J., A new method for determining the relative bonded area, TAPPI J., 4(6), 23–28 (2005).

[27] Batchelor W. J., Kibblewhite R. P., He J., A new method for measuring RBA applied to the page equation for the tensile strength of paper, APPITA J., 61(4), 302–306 (2008).

[28] Page D.H., Tydeman P.A., Hunt M., A study of fibre-to-fibre bonding by direct observation, In: Formation and Structure of Paper., IInd Fundamental Research Symposium, Oxford, pp. 171–193 (1962).

[29] Le Corre S., Dumont P., Orgéas L., Favier D., Rheology of highly concentrated planar fiber suspensions, J. Rheol., 49, 1029–1058 (2005).

[30] Toll S., Packing mechanics of fiber reinforcements, Polym. Eng. Sci. 38, 1337–1387 (1998).

[31] Dodson C.T.J., Spatial Variability and the Theory of Sampling in Random Fibrous Networks, Journal of the Royal Statistical Society. Series B (Methodological), 33(1), 88–94 (1971).

[32] Vassal J. P., Orgéas, Auriault J. L., Le Corre S., Upscaling the diffusion equations in particulate media made by highly conductive particles. Part II: Application to the fibrous materials, Phys. Rev. 77, 011303 (2008).

[33] Sampson W.W., Sirviö, The statistics of interfibre contact in random fibre networks, J. Pulp Pap. Sci., 31(3), 127–131 (2005).

[34] Yang C.F., Eusufzai A.R.K., Sankar R., Mark R.E., Perkins R.W., Measurements of geometric parameters of fibre networks. Part 1. Bonded surfaces, aspect ratios, fibre moments of inertia, bonding site probabilities, Svensk Papperstidn., 81(13), 426–433 (1978).

[35] Paavilainen L., Bonding potential of softwood sulphate fibres, Paperi ja Puu, 76(3), 162–173 (1994).

Chapitre 8

Multiscale analysis of the hygroexpansion behaviour of cellulosic fibre networks

Résumé

Cette étude vise à mieux comprendre les liens les phénomènes d'hygroexpansion aux échelles macroscopique et microscopique ainsi que l'évolution des propriétés élastiques des papiers avec leur teneur en eau. Pour cela l'étude menée a permis de déterminer grâce à des moyens d'essais classiques les propriétés de sorption d'eau et les coefficients d'hygroexpansion dans le plan des papiers ainsi que l'évolution de leur module de Young en fonction de leur teneur en eau. Une caractérisation plus fine des phénomènes d'hygroexpansion a pu être menée grâce des expériences originales d'imagerie par microtomographie à rayons X au cours desquelles l'humidité relative de l'air environnant les échantillons a été contrôlée. L'analyse de ces données a permis de mesurer les coefficients d'hygroexpansion hors plan des papiers testés ainsi que de mesurer l'évolution des propriétés hygroexpansives anisotropes de quelques fibres isolées dans les réseaux fibreux : l'hygroexpansion transversale des fibres étant bien plus prononcée que leur hygroexpansion longitudinale. Ces résultats permettent de jauger l'efficacité des liaisons pour transmettre les déformations hygroexpansives longitudinales et transversales des fibres à l'ensemble du réseau. Enfin une analyse fine de la chute extrêmement prononcée des propriétés élastiques des papiers les plus denses avec l'augmentation de leur teneur en eau demanderait sans doute de pouvoir mieux visualiser les mécanismes de déformation des liaisons.

8.1 Introduction

The objective of this study is to better understand the links between the hygroexpansion phenomena occurring at the network macroscale and the fibre microscopic scale together with the evolution of the elastic properties of papers with their moisture content. Classical testing devices were used to characterise the water sorption properties and the hygroexpansive coefficients of papers together with their Young's moduli with respect to their moisture content. A finer characterisation of the hygroexpansive phenomena was performed using original X-ray imaging experiments where the relative humidity of the air surrounding the specimens was controlled. The analysis of the acquired data allowed us to measure the out-of-plane hygroexpansion coefficients of papers as well as to in situ measure the evolution of anisotropic hygroexpansive properties of some fibres within the fibrous networks: the transverse fibre hygroexpansion being much more pronounced than the longitudinal fibre hygroexpansion. Such results allowed to gauge the efficiency of bonds to transmit the longitudinal and transverse hygroexpansion of fibres to the overall hygroexpansive network deformation. Furthermore, the analysis of the dramatic decrease of the elastic properties of the densest papers would require a better visualisation of the fibre-to-fibre bond deformation mechanisms.

8.2 Materials and methods

8.2.1 Model papers

To achieve the hygromechanical characterisation, model papers were produced using various formation, pressing and drying conditions. The raw material used for the model papers was a bleached pulp from softwood (maritime pine). Screening operations were performed to remove smaller particles than 0.5 mm. The resulting mean value of the fibre length was about 2 mm, see also the previous chapters. Using this classified pulp, model papers were produced with a targeted grammage of 40 g m^{-2} and in plane random fibre orientation or in-plane preferential fibre orientation similarly to the papers described in chapters 6 and 7. In plane isotropic papers were wet pressed at 0.10 MPa, 0.42 MPa and 0.51 MPa and dried freely or under constraint. The orientated samples were pressed at 0.14 MPa, 0.42 MPa and 0.51 MPa and dried freely or under constraint.

8.2.2 Moisture content *vs.* relative humidity

Samples of model papers were subjected to the following Relative Humidity steps RH = 50% → 40% → 30% → 20% → 30 → 40% → 50% → 60% → 70% → 80% → 70% → 60% → 50% at ambient temperature (T=23°C) using the Varimass device (Techpap, Grenoble, France). During the RH variations, the mass variation Δm of the samples were regularly measured. Their sta-

bilised mass was measured after 1 h 30 min. The water content c of the samples was then estimated by

$$c = \frac{\Delta m}{m_d}, \tag{8.1}$$

where m_d was the mass of the sample dried during 24 h in a furnace at 105°C.

8.2.3 In-plane hygroexpansion measurement

In order to study the natural hygroexpansion of the model papers subjected to the same relative humidity variations, a specific apparatus was used: the Varidim device (Techpap, Grenoble, France). Using this apparatus it was possible to simultaneously measure the length variations ΔL of 10 rectangular samples with an initial reference length L_0 = 150 mm or L_0 = 100 mm (the exact initial of samples between jaws is in fact slightly higher) and an initial width of l_0 = 15 mm cut at different angular orientations in the model papers (machine direction MD: 0°, 22°, 45°, 67°, cross direction CD: 90°). Within this apparatus, the samples are vertically mounted. They are fastened by magnetic jaws. The lower end magnetic jaws are lightweight (< 20 g), mounted in a slide and connected to a displacement LVDT sensor, whereas the upper end magnetic jaws are fixed. The in plane macroscopic hygroexpansion strain ε_h was calculated according to the following equation:

$$\varepsilon_h = \ln\left(1 + \frac{\Delta L}{L_0}\right). \tag{8.2}$$

The measurement accuracy was 2% for the relative humidity, 0.5°C for the temperature, 0.005 mg for the mass and 3 μm for the length measurements.
Note that during the first relative humidity cycles,a slight creep effect of the specimens could be observed. This creep can be induced by the release of dried-in strain in paper or due to the weight effect of the lower jaw. In this case this creep effect is a mecanosorptive creep [2, 3]. However, the creep tends to disappear after 12 relative humidity cycles. Then to disregard any creep effects and only on the hygroexpansion behaviour of paper, the data presented here were taken when such stabilisation was achieved. Fig. 8.1(a) shows the evolution of the moisture content of model papers with the relative humidity. For a jump of RH = 20% to RH = 80%, the moisture content increases from 4% to 10%. A remarkable hysteresis effect [4] for the evolution of the moisture content with respect to the relative humidity is seen in this graph. The hysteresis phenomenon is related to the relative humidity changes: in desorption, the moisture content is higher at a given relative humidity as in absorption, i.e. the moisture content of a paper does not only depend on the reltive humidity of the surrounding air but is also given by a previous humidity history. It should also be noted that the various manufac-

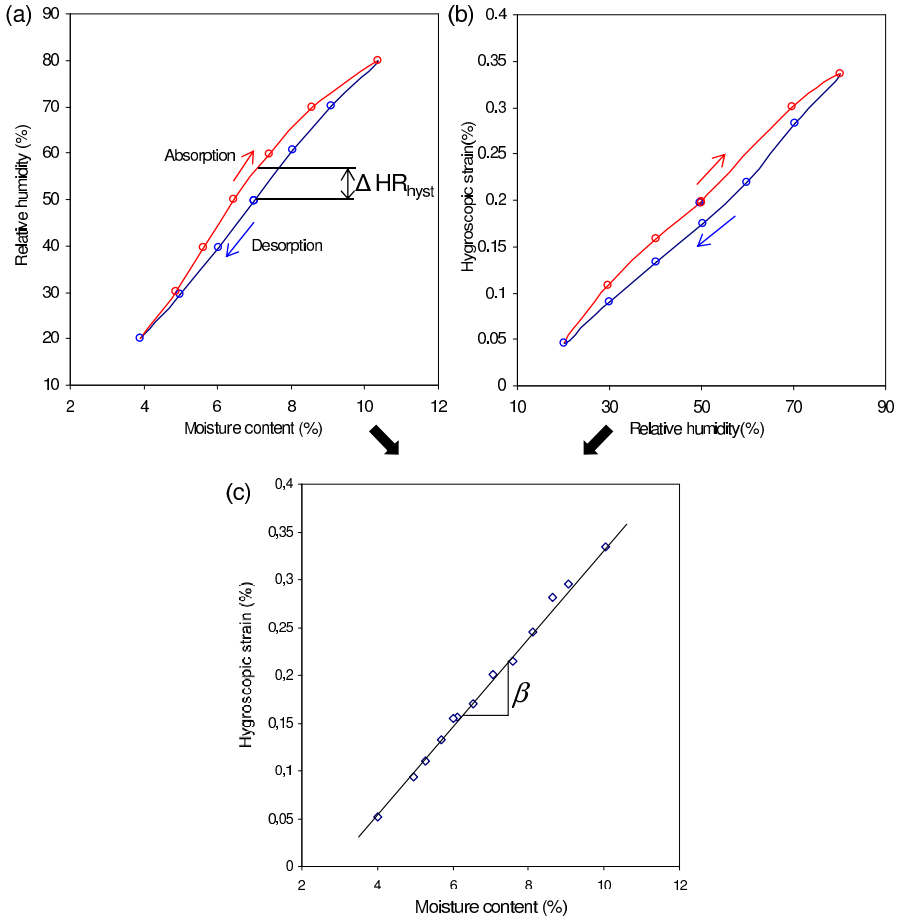


Figure 8.1: (a) Relative humidity *vs.* the moisture content of model papers, (b) hygroscopic strains *vs.* relative humidity (in plane isotropic model paper, wet pressing of 0.51 MPa and constrained drying) and (c) hygroscopic strain as a function of moisture content obtained by the combination of (a) and (b).

turing operations have little impact on the evolution of the moisture content of model papers. Then the evolution of the moisture content is mainly related to the characteristics of the used raw pulp.
In Fig. 8.1(b), the evolution of the in plane hygroscopic strain curve *vs.* the relative humidity (after stabilisation) shows a similar hysteresis effect. The latter can be mainly associated to the hysteresis effect between the moisture content and the relative humidity [4]. Then combining data from both graphs from Fig. 8.1(a) and Fig. 8.1(b) allowed the evolution of the in plane hygroscopic strain to be obtained with respect to the moisture content. The trend tends to be linear. The gradient of the curve betweent the hygroscopic strain and the moisture content delivers the the in plane hygroexpansion coefficient β_L:

$$\beta_L = \frac{\Delta\varepsilon_h}{\Delta c}. \tag{8.3}$$

8.2.4 Tensile tests

The mechanical properties of model papers were studied using a simple tensile horizontal device (Lorentzen & Wettre No. 162, tensile tester) installed in an air conditioned room (RH = 50%, T = 23°C) with paper strips of 100 mm in length and 15 mm in width to measure the Young's modulus E of model papers. For papers having in plane preferential fibre orientation, tests were achieved in various angular directions: MD and CD as well as for directions forming an angle of ±15°, ±30°, ±45°, ±60° and ±75° with the machine direction. Tests were repeated 2 to 5 times. Other tensile tests were also carried out in varying relative humidity conditions. For that purpose, samples were placed in advance during at least 1 h in a controlled humidity chamber, and then tested by maintaining the humidity set point during the tensile test.

8.2.5 X-ray microtomography with *in situ* controlled RH

X-ray microtomography experiments were performed at the European Synchrotron Radiation Facility (ESRF, ID19 beamline, Grenoble, France) to get three-dimensional images of the paper microstructures (X-ray energy = 17.6 ± 0.9 keV, CCD detector of 2048 × 2048 pixels, voxel size 0.7 μm × 0.7 μm × 0.7 μm). Fast scans of small specimens of dimensions of 1.4 mm × 1.4 mm × t mm extracted from the produced model papers were achieved (t is their thickness). Tests were carried out by controlling *in situ* the relative humidity at given set-points (RH = 30%, 50%, 70% or 80%) when imaging the specimens. For that a relative humidity generator similar to those used for the Varimass and Varidim devices was used. Then image treatments similar to those detailed in the previous chapters were carried out to get denoised greyscale

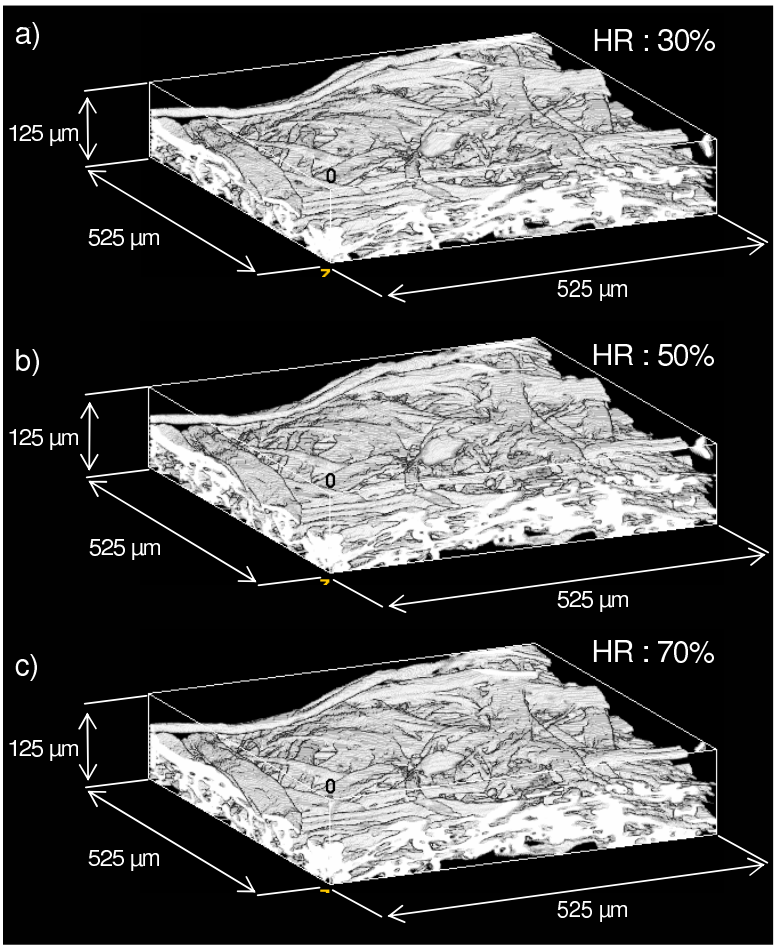


Figure 8.2: 3D reconstructions obtained by X-ray microtomography of an orientated paper wet pressed at σ_0 = 0.42 MPa and dried under constrained subjected to the following relative humidity steps: (a) RH = 30% , (b) RH = 50%, (c) RH = 70%.

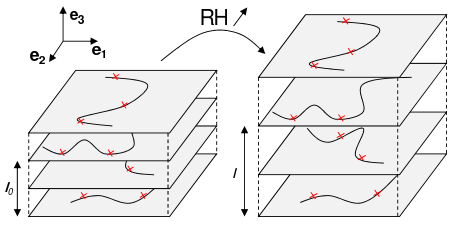


Figure 8.3: Principle for measuring the displacement in the thickness of visually recognisable point coordinates of fibres subjected to relative humidity changes.

or binarised images of the microstructure of papers.
Two specimens could be imaged: an in plane isotropic paper (wet pressing of 0.51 MPa, constrained drying) and an in plane orientated paper (wet pressing of 0.42 MPa, constrained drying). Examples of resulting binarised images are shown in Fig. 8.2 for the in plane orientated paper that was subjected to the following relative humidity steps: RH = 30 → 50 → 70%. The in plane isotropic paper was imaged at 50% RH and 80% RH.
The analysis of the reconstructed volumes allowed us to measure the out-of-plane hygroexpansion of paper fibrous networks and the hygroexpansion of individual fibres within the fibrous networks:

- *Measurement of the out-of-plane hygroexpansion of fibrous networks*
  The three-dimensional images acquired at different relative humidity conditions were used to estimate the out-of-plane hygroexpansion of the fibrous networks. As presented in the scheme of Fig. 8.3, the coordinates of some recognisable points belonging to several fibres within the networks were recorded at different positions in the thickness of the studied sample for the different relative humidity set-points. From the displacement gradient along the z-direction, it was possible to estimate the average out-of-plane hygroexpansion coefficient β_t of paper for a given RH jump and consequently a given moisture content jump Δc (see Fig. 8.7 below).

- *Measurement of the hygroexpansion of individual fibres*
  To estimate the swelling of individual fibres within networks subjected to relative humidity changes, a manual approach using grey scale images was adopted. It consisted in measuring the variations of the width L of several fibres that could be visually identified within the images. A first approach consisted in the width variations of scrutinised alongside their centreline. For that coordinates of points giving the apparent fibre width L_a, *i.e.* the largest dimension of the scrutinized fibre cross sections, were picked in image slices parallel to ($\boldsymbol{e}_2$,$\boldsymbol{e}_3$) distant from 10 voxels. The centres of these segments determined the centreline of the considered fibre. From two consecutive coordinates i and j along the centreline, a local unit tangent vector $\boldsymbol{p}_i$ was defined for the point i. Since the fibre centreline was not normal to ($\boldsymbol{e}_2$,$\boldsymbol{e}_3$), the apparent width L_a was corrected by accounting for $\boldsymbol{p}_i$ in order to get the "real" fibre width L of the fibre cross sections normal to the fibre centreline. For that the two first Euler's angles ψ and θ shown in Fig. 8.4 were needed to obtain L as follows:

$$L = \sqrt{(\boldsymbol{L}_a.\boldsymbol{e}_2 \cos\psi + \boldsymbol{L}_a.\boldsymbol{e}_3 \sin\psi)^2 + (-\boldsymbol{L}_a.\boldsymbol{e}_2 \sin\psi \cos\theta + \boldsymbol{L}_a.\boldsymbol{e}_3 \cos\psi \cos\theta)^2}. \quad (8.4)$$

  In order to get more quantitative data for the fibre width variations within the networks another approach was also adopted. It consisted in picking a large population of ap-

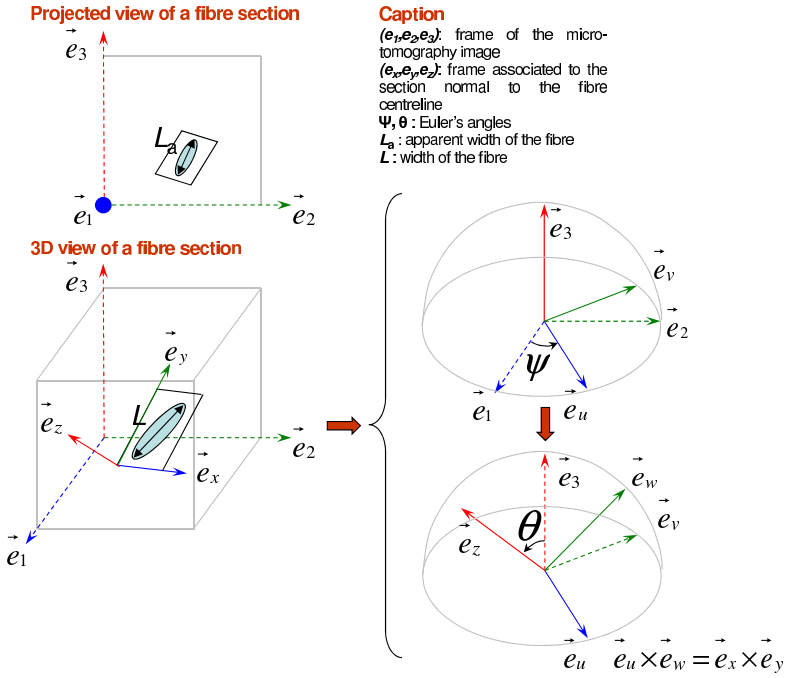


Figure 8.4: Description of Euler's angles ψ and θ.

parent widths L_a of a set of several fibres. As in this case the measured width was the apparent width rather than the real width, some precautions were taken: it was visually checked that the fibre centreline was approximately normal to the plane ($\boldsymbol{e}_2$,$\boldsymbol{e}_3$) where the width L_a were picked. To obtain statistical representative distributions, at least 120 measurements were performed within each image. The frequency interval size for plotting the fibre width distributions was set to 5 μm.

8.3 Results

8.3.1 In-plane hygroexpansion of fibrous networks

The effects of the increase of the density of papers on the in plane hygroexpansion coefficients β_L are shown in Figs. 8.5(a), 8.5(b) and 8.5(c) for all tested model papers. For the in plane isotropic specimens, the increase of the apparent density that is related to the increase of the packing stress applied during the wet pressing operation tends to slightly decrease the hygroexpansion coefficient β_L. A similar trend is observed in MD for in plane orientated papers. However, there is an opposite behaviour in CD for the in plane orientated papers: in this case the in plane hygroexpansion coefficient increases when increasing the paper ap-

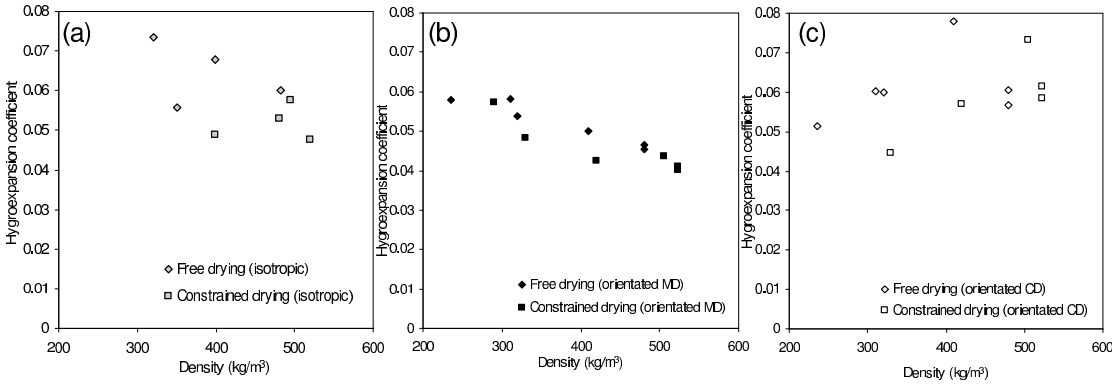


Figure 8.5: In plane hygroexpansion coefficient β_L as a function of the apparent density of (a) in plane isotropic papers, (b) in plane orientated papers along MD and (c) in plane orientated papers along CD.

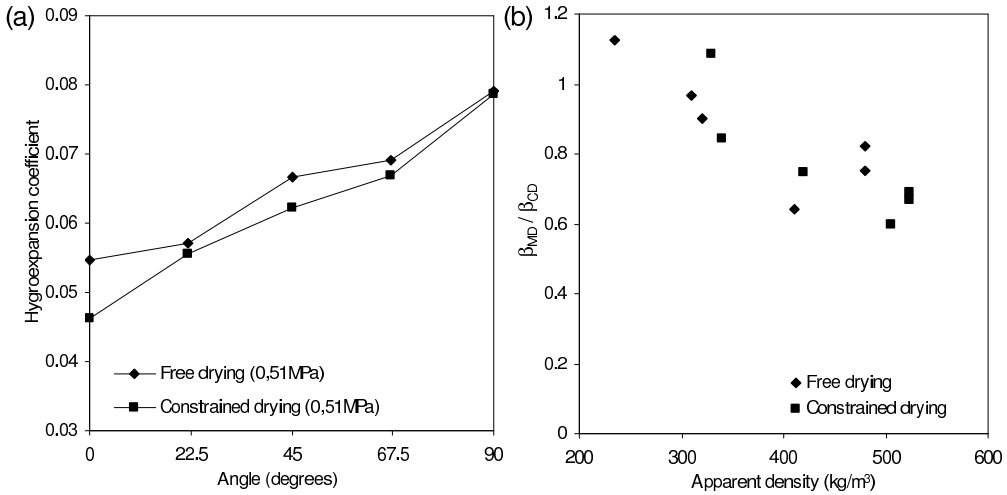


Figure 8.6: (a) Hygroexpansion coefficient β_L of model papers according to their orientation relative to the machine direction (MD = 0° and CD = 90°). (b) Ratio β_{MD}/β_{CD} as a function of the apparent density of model papers.

parent density. No clear effect of the free or constrained drying conditions is visible in Fig. 8.5(a) although it is commonly observed that freely dried papers exhibit a higher hygroexpansion than freely dried ones. This particular behaviour of model papers is probably due to the use of non refined fibres, which induces low shrinkage phenomena during drying. Consequently model papers have quite similar hygroexpansive behaviours whatever their drying conditions.
For the in plane orientated papers, the hygroexpansion coefficients β_L of several samples cut in the same papers in intermediate directions between CD and MD were measured. The results of these tests are displayed in Fig. 8.6(a). This figure shows the anisotropy of the hygroexpansion coefficient β_L as it depends on the in-plane angular orientation of the tested samples. Typically, the more the fibres are aligned in a direction, the lowest the in plane hygroexpansion coefficient along this direction. This is a common observation for papers [6] that is usually related to the anisotropy of the hygroexpansion coefficient of single fibres (the hygroexpansion of fibre is indeed 3 to 5 times higher in its transversal direction than in its longitudinal direction) and to the fibrous network structure (see also section Discussion).
The ratio β_{MD}/β_{CD} is plotted in Fig. 8.6(b) as a function of the apparent density of papers whatever their drying conditions. A decrease of this ratio is observed when increasing the apparent density. Again no influence of the drying conditions can be observed. Note also that the overall in plane fibre orientation of all these papers is the same. Then this means that the more the density of model papers increases, the more the anisotropy of their hygroexpansion behaviour is increases. As the number of bonds, the bonding degree ratio and the surface of bonds increase with the paper density, *cf.* previous chapters, this suggests that the transversal hygroexpansion of fibres is more efficiently transmitted to the network structure through the bonding regions. This is ascertained when observing the hygroexpansive behaviour of papers having the lowest densities the ratio $\beta_{MD}/\beta_{CD} \approx 1$. In this case, this suggests that the transversal hygroexpansion of the fibres is practically not transmitted through the bonding regions.

8.3.2 Out-of-plane hygroexpansion of fibrous networks

In Fig. 8.7, the displacements due to the hygroexpansion phenomenon along the thickness direction of material points belonging to fibres are plotted as a function of their initial position for both papers (in plane isotropic paper wet pressed at 0.51 MPa and in plane orientated paper wet pressed at 0.42 MPa dried under constraint). Linear fits correctly described the experimental trends in the considered range of positions. Consequently, their slopes were considered as giving us the out-of-plane hygroscopic strains ε_t^h of tested papers. It was found that the hygroscopic strain in the thickness is higher in the case of the in plane isotropic paper, *i.e.* $\varepsilon_t^h = 0.077$, compared to the in plane orientated one, *i.e.* $\varepsilon_t^h = 0.052$. These strains respec-

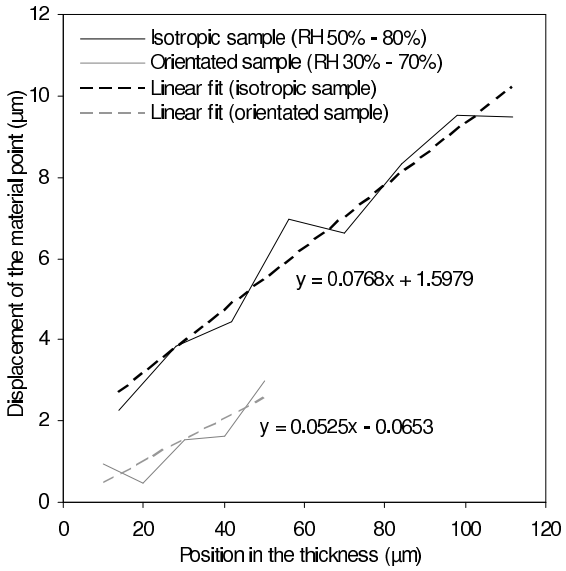


Figure 8.7: Hygroscopic displacements of fibre material's points in the paper thickness direction as a function of their initial positions in the sample thickness: tests performed for an isotropic sample pressed at 0.51 MPa and for an orientated sample pressed at 0.42 MPa, both samples being dried under constraint.

tively led to an out-of-plane hygroexpansion coefficient $\beta_t = 2.35$ for the isotropic specimen and to $\beta_t = 1.40$ for the orientated specimen. Please notice that the higher hygroexpansion coefficient for the isotropic specimen was found in a paper having a higher density, *i.e.* $\rho_X = 675$ kgm̃$^{-3}$, as the lower value for the orientated specimen was obtained for a lower density, *i.e.* $\rho_X = 495$ kg m^{-3}.

8.3.3 Hygroexpansion of individual fibres

Fig. 8.8(a), resp. 8.8(d), shows the evolution of the Euler's angles ψ, resp. θ describing the inclination of the cross sections of a fibre with a closed lumen analysed *in situ* inside an in plane isotropic paper pressed at 0.51 MPa dried under constraint. Figs.8.8(b) and 8.8(e), resp. Figs. 8.8(c) and 8.8(f), show similar measurements for fibres with a closed lumen, resp. an open lumen, analysed within the structure of an in-plane orientated paper pressed at 0.42 MPa and dried under constraint. Slight differences between the curves obtained at the two tested relative humidity conditions. For their analysis, the mean value and the standard deviation of both angles were calculated. Data reported in Tab. 8.1 for the ratios of the standard deviation to the mean angles $\sigma_\psi / \langle\psi\rangle$ and $\sigma_\theta / \langle\theta\rangle$ are illustrative of the influence of the relative humidity on the fibre centreline geometry within the fibrous network. It is seen that an increase of the relative humidity tends to increase $\sigma_\theta / \langle\theta\rangle$, whereas no clear evolution of $\sigma_\psi / \langle\psi\rangle$ can be observed. This reveals an increase of the heterogeneity of θ, whereas no clear

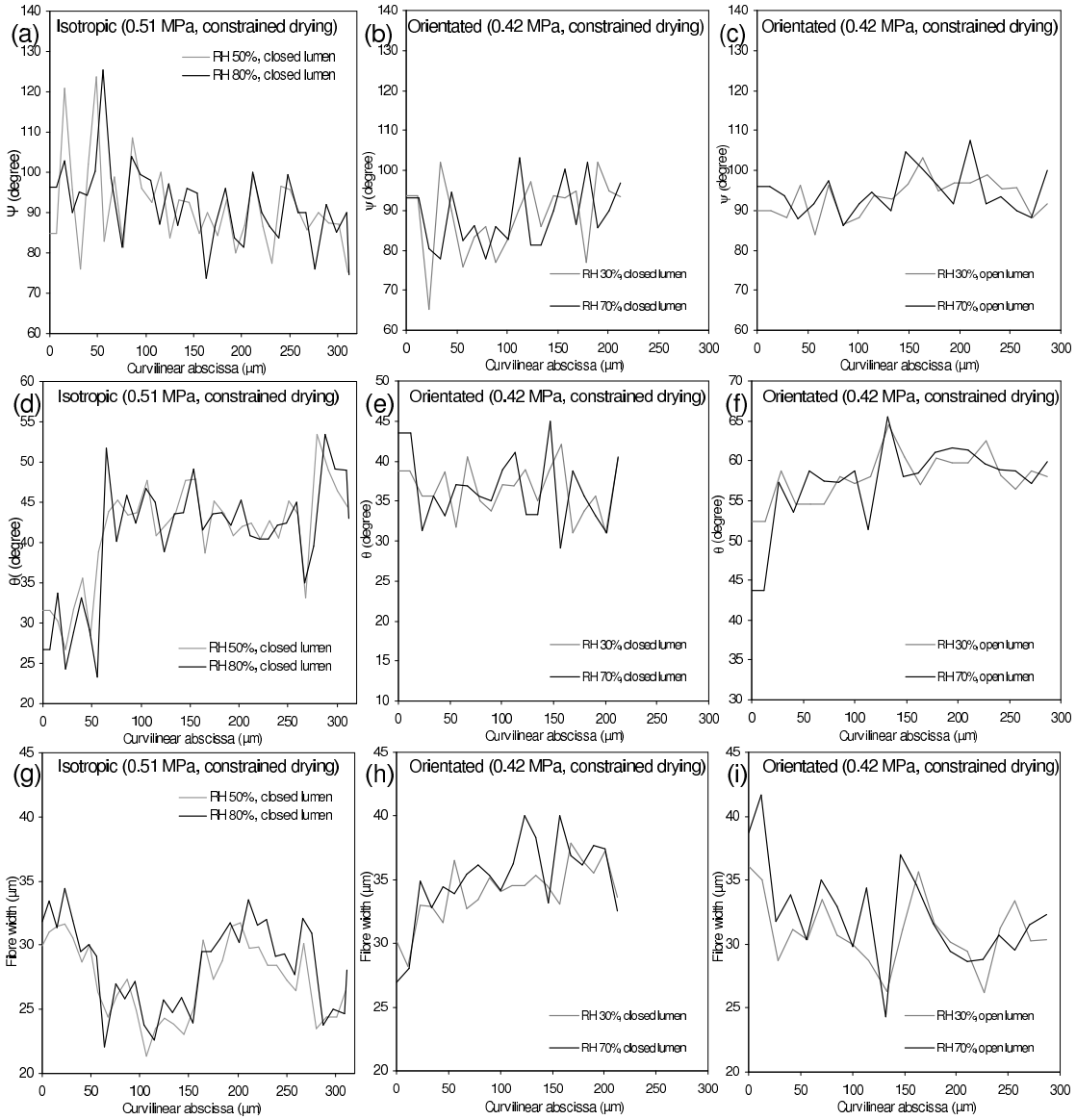


Figure 8.8: Evolution of the fibre centreline angles (a,b,c) ψ and (d,e,f) θ, and (g,h,i) the fibre width as a function of its curvilinear abscissa, for (a,d,g), a closed lumen fibre within an isotropic paper pressed at 0.51 MPa dried under constraint, for (b,e,h), a close lumen fibre within an orientated paper pressed at 0.42 MPa also dried under constraint, and for (c,f,i), an open lumen fibre within the same orientated paper.

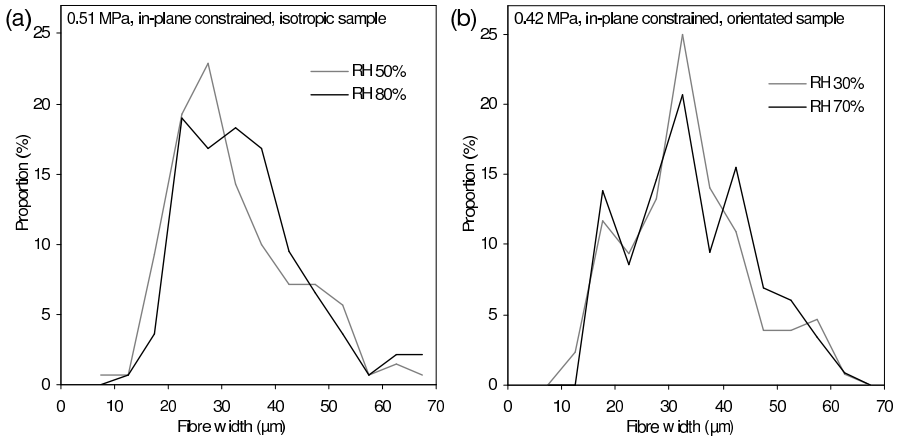


Figure 8.9: Fibre width distributions for different relative humidity setpoints for (a), an isotropic sample and (b), an orientated sample, for similar packing stress conditions and for constrained drying conditions.

Formation	Isotropic		Orientated			
Lumen	Closed		Closed		Open	
Relative Humidity set-points (%)	50	80	30	70	30	70
Fibre centreline						
Longitudinal strain ϵ_L^f (%)	0.32		0.09		0.03	
Longitudinal hygroexpansion coefficient β_f^L	0.1		0.02		0.01	
Mean angle $\langle\psi\rangle$ (°)	91.4	92.1	88.5	88.6	93.2	94.5
Standard deviation σ_ψ (°)	11.0	9.8	9.4	7.9	4.7	5.5
$\sigma_\psi/\langle\psi\rangle$ (%)	12	11	11	9	5	6
Mean angle $\langle\theta\rangle$ (°)	41.0	40.3	36.4	36.6	57.8	57.1
Standard deviation σ_θ (°)	6.4	7.8	3.2	4.5	3.1	5.4
$\sigma_\theta/\langle\theta\rangle$ (%)	15	19	9	12	5	10
Fibre section						
Mean width $\langle L\rangle$ (μm)	27.4	28.6	34.1	35.1	31.0	32.4
Standard deviation σ_L (μm)	3.0	3.4	2.3	3.3	2.7	3.9
$\sigma_L/\langle L\rangle$ (%)	11	12	7	10	9	12
Transversal hygroexpansion coefficient β_f^r	1.25		0.79		1.17	

Table 8.1: Descriptors of the fibre centreline: longitudinal strain ϵ_L^f and mean angles $\langle\psi\rangle$ and $\langle\theta\rangle$, and related standard deviation σ_ψ and σ_θ for various formation and relative humidity conditions. Descriptors of the fibre cross sections: mean width $\langle L\rangle$ and related standard deviation σ_L, and transversal hygroexpansion coefficient β_L^f for various formation and relative humidity conditions.

effect is visible on ψ. In other words, this suggests that an increase of RH tends to deform the fibre centreline in the thickness direction of papers.
Besides, in Figs. 8.8(a-f), some peaks of the curves shown for each fibre seem to be characteristic and recognisable between the two tested RH conditions. Those peaks are sometimes aligned or sometimes shifted, which suggests an heterogeneous elongation and shrinkage of the fibre centreline. Accounting for the curvilinear abscissa of those peaks it was possible to give in Tab. 8.1 a rough estimation of the average longitudinal strain ε_L^f of the three characterised fibres. The values of ε_L^f show that the longitudinal strain of the fibre centreline is rather weak: i.e. 0.32% for the fibre of the in plane isotropic paper and equal or less to 0.09% for fibres of the in plane orientated paper, see also Tab. 8.1 where the roughly estimated longitudinal fibre hygroexpansion coefficient is also reported.
The swelling of the fibres' cross sections was studied through the evolution of their width L as a function of its curvilinear abscissa as shown in Figs. 8.8(g-i). The fibre width and its variations with the relative humidity appears as quite heterogeneous. For the highest relative humidity conditions (80% in the case of in plane isotropic paper and 70% in the case of in plane orientated paper) the curves are shifted towards higher width values than those obtained for the lowest relative humidity conditions (50% for the isotropic specimen and 30% for the in plane orientated specimen). This observation is confirmed by the mean width $\langle L \rangle$ reported in 8.1 showing an increase of 4.3% for the closed lumen fibre of the in plane isotropic paper (RH jump from 50% to 80%) and 3.0%, resp. 4.5%, for the closed lumen, resp. open lumen fibre, of the in plane orientated paper (RH jump from 30% to 70%). Moreover the ratios $\sigma_L/\langle L \rangle$ depicting the scattering of the fibre width reveals that the fibre width property becomes more heterogeneous when increasing the relative humidity. Finally, using the equivalence between the relative humidity and the moisture content (see the previous sections), it was possible to give an estimation of the transversal hygroexpansion coefficient β_f^r of fibres. It was found that β_f^r = 1.25 for the closed lumen fibre within the in plane isotropic paper and β_f^r = 0.79, resp. β_f^r = 1.17 for the closed lumen, resp. open lumen, fibre within the in plane orientated paper, see also Tab. 8.1.
Those results show that the average transversal hygroexpansion of fibres is much more pronounced (one order of magnitude) that the longitudinal one. This is a known result for the transversal shrinkage of fibres compared to their longitudinal shrinkage during drying [8]. However these observations set the pace to a local observation of the fibre hygroexpansion mechanisms (centreline elongation, cross section swelling and inclination) that seem to be quite heterogeneous along the fibre centreline. This effect might be due to the presence of the numerous fibre-to-fibre bonds alongside the fibre (see the previous chapter).

8.3.4 Hygroexpansion of a set of individual fibres

The advantage of the previous results is that hygroexpansion coefficients are determined for a given fibre within the network. However, the natural variability of the fibre morphology should lead to different values of β_f^r depending on each fibre. To overcome this, a large population of fibres was studied to get distribution functions of the fibre width. The evolution of the fibre width distributions subjected to different relative humidity jumps are shown in Fig. 8.9(a), resp. Fig. 8.9(b), for in plane isotropic, resp. in plane orientated papers.
Whatever the relative humidity set-point, it was observed that the shape of the width distributions are clearly different between isotropic and orientated specimens (see also the previous chapter). For both papers, fibre width distributions tend to shift towards higher values when the relative humidity is increased. In the case of the in plane isotropic paper, see Fig. 8.9(a), the mean width value is 33.4 μm at RH=50% and increases up to 35.4 μm at RH=80%. The corresponding standard deviations, resp. the ratios of the standard deviation to the mean value, are 12.1 μm, resp. 36%, at RH=50% and 11.2 μm, resp. 31%, at RH=80%. This suggests that increasing the relative humidity tends to decrease the heterogeneity of this geometrical property. Moreover, the mean values allow us to get an estimation of the transversal hygroscopic strain, i.e. 5.83%. This leads to a transversal hygroexpansion coefficient β_f^r=1.77. In the case of the orientated specimen, the width mean value is 33.3 μm at RH=30% and increase up to 35.0 μm at RH=70%. The corresponding standard deviations, resp. the ratios of the standard deviation to the mean value, are 10.8 μm, resp. 32%, at RH=30% and 11.4 μm, resp. 33%, at RH=70%. Thus this change in relative humidity has a low influence on the width distribution shape. The related hygroscopic strain is 4.96 % and leads to a transversal hygroexpansive coefficient β_f^r=1.27. Note that the order of magnitude of the transversal hygroexpansion coefficients of fibres is the same as in the previous section.

8.3.5 Hygromechanical properties of fibrous networks

Fig. 8.10(a) shows the large decrease of the Young's moduli of in plane isotropic papers with the increase of their moisture content. This is a common observation for papers [9, 11, 10]. However, in this particular case, it seems that the Young's modulus decrease is more pronounced when the papers' density is increased. The influence of the drying conditions on the evolution of the Young's modulus seems to be weak, except for constrained dried papers for moisture contents over 7%. In order to get an estimation of the effect of the apparent density of papers on such evolution, experimental data shown in Fig. 8.10(a) were fitted. The evolution of the slopes A and the y-intercept B of those fits were investigated with respect to the paper apparent density in Figs. 8.10(b,c). Fig. 8.10(c) emphasised the effect of the increase of density on the increase of the Young's modulus of papers, for a given reference (hypothetical) moisture content of 0%. Note that such evolution is in accordance with the

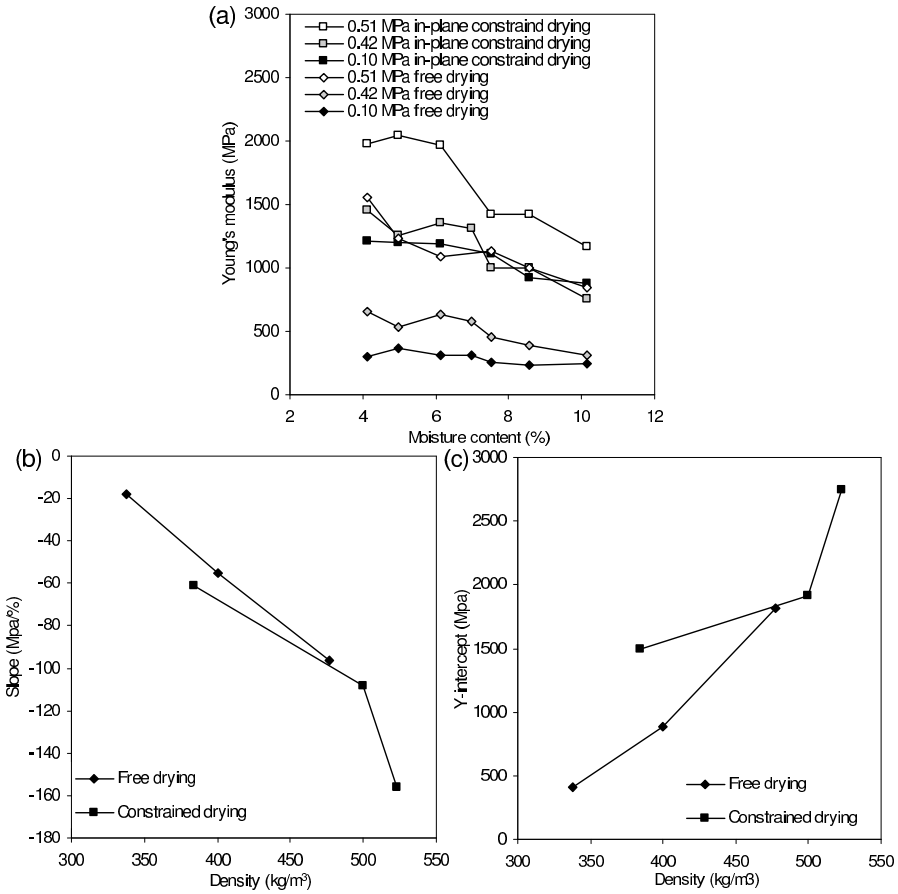


Figure 8.10: (a) Young's modulus as a function of the moisture content of in-plane isotropic papers structure for different pressing and drying conditions (relative humidity varies from 20% to 80%). Evolution of (b) the slope and (c) the y-intercept of the linear fits of the curves of (a) as a function of the density of the considered paper.

evolution of the papers' Young's modulus shown in the previous chapter (where the moisture content was about $\approx 7\%$ corresponding to a relative humidity of 50%). It shows the predominant role of fibre-to-fibre bonding on the Young's modulus as with the increase of density the number of fibre-to-fibre bonds and the bonding degree ratio increase (see the previous chapter). Fig. 8.10(b) suggests that the decrease of the Young's modulus with the moisture content is all the more pronounced and visible as the papers' density is high. Note that Figs. 8.10(b) and 8.10(c) also highlight that there is no clear effect of the drying conditions (see also Fig. 8.10(a)). Finally, the evolution of Young's modulus with the moisture content could be roughly modelled by independent functions of the moisture content and the density as follows:

$$E(c,\rho) = A(\rho)c + B(\rho), \tag{8.5}$$

with $A(\rho)$ a decreasing function of ρ and $B(\rho)$ an increasing function of the paper density.

8.4 Summary of main aspects and discussion

At the macroscopic scale, the order of magnitude of the in plane hygroexpansions coefficients β_L comprised between 0.04 and 0.08 of the various tested papers are in agreement with literature data that can be found for instance in [13, 12, 7, 17, 14, 15] for a large variety of in plane isotropic laboratory or in plane orientated laboratory and industrial papers. The out-of-plane hygroexpansive properties of papers were only scarcely studied [13, 20, 21]. The present results confirmed that the out-of-plane hygroexpansion coefficients β_t were at least one order of magnitude higher than the in plane hygroexpansion coefficients.
At the macroscopic scale, it was also observed that the paper density had a rather weak influence on the hygroexpansion similarly to the drying conditions. Besides the CD hygroexpansive strains were higher than in MD. Such trends are obviously related to the structure of fibrous networks, to the fibre hygroexpansive properties and to the fibre-to-fibre bonding:

- The most original results are given by the analysis of the evolution at the microstructural of the geometry of fibres (centrelines, cross section inclination and width) with respect to the humidity change. Even if the analysis still suffers from the difficulty to perform such measurements, it shows that it is feasible to obtain microstructural information for fibres within the complex paper fibrous networks. Only rough trends could be obtained for the hygroexpansive coefficients of single fibres: the longitudinal fibre hygroexpansion coefficient (certainly the most difficult to estimate) ranges between 0.01 to 0.1(!), whereas the transversal coefficient ranges between 0.8 to 1.8 whatever the types of fibrous networks. The order of magnitude of such values and their ratios are in accordance with scarce former experimental results from (ex situ) tests on individual

fibres (see for instance [22, 23]).

- Hygroexpansion mechanisms can be seen as a transmission of the longitudinal and transverse hygroexpansions of fibres through the bonds to the network. Then one would expect an increase of the hygroexpansion coefficient with the increase of density [18, 1] as parameters like the number of fibre-to-fibre bonds and the fibre bonding degree ratio are increasing functions of the density (see the previous chapter) and hence a better hygroexpansion transmission could be expected. However, the inverse trend was observed for in plane isotropic papers and the MD for in plane anisotropic papers as shown in Figs. 8.5(a,b) similarly to some results given in [1, 15]). But the reason for such evolution is unclear [18] and might be related to a shrinkage phenomenon occurring because of high humidity reached during the measurement. In that particular case the hygroexpansion would be counteracted by the (drying) shrinkage phenomenon. Note that for the CD of in plane orientated papers, the slight increase of the in plane hygroexpansive coefficient that was observed here would on the contrary ascertain the role of increasing fibre-to-fibre bonding to induce a higher hygroexpansion.

- Then one might wonder if the hygroexpansion transmission is efficient. For that data measured for individual fibres can be used to implement the hygroexpansion model of papers developed by Uesaka [19]. Considering that fibres are transversely isotropic, the in plane hygroexpansion coefficients of in plane anisotropic papers can be written as follows

$$\beta_{MD} = \beta_f^L + b_1(\beta_f^r - \beta_f^L) \tag{8.6}$$

in MD,

$$\beta_{CD} = \beta_f^L + b_2(\beta_f^r - \beta_f^L) \tag{8.7}$$

in CD, whereas the out-of-plane hygroexpansion coefficient is:

$$\beta_t = \beta_f^r - b_3(\beta_f^r - \beta_f^L), \tag{8.8}$$

where the coefficients b_1, b_2 and b_3 describe the degree of stress transfer from MD, CD or in the thickness direction t in the network to the transverse direction of fibre. In other words, these parameters are characteristic of the efficiency of fibre-to-fibre bonds to transmit the fibre hygroexpansivity to the fibrous networks. By comparison with the experimental data, the values of the coefficients b_1 and b_2 are obviously very low. Roughly, accounting for average values of the present experimental data for in plane orientated papers, $b_1 \approx 0$, $b_2 \approx 0.008$ (a value close to that simulated in [19]) showing that the in plane hygroexpansion of papers is dominated by the longitudinal fibre hygroexpansion, contrary to the traditional interpretation of paper hygroexpansivity.

The coefficient $b_3 \approx -0.08$ is negative because the out-of-plane paper hygroexpansion coefficient β_t is slightly larger than the transverse hygroexpansion of fibres β_f^r. The negative value of this coefficient shows the out-of-plane hygroexpansion is not only be related to the transverse fibre hygroexpansion β_f^r but might be also be related to the out-of-plane deformation of fibres that was previously noticed. For in plane isotropic papers similar estimations was performed with pa $\beta_{MD} = \beta_{CD}$, $b_1 = b_2 \approx 0.008$ and $b_3 = -0.8$.

- The low influence of drying conditions on the paper hygroexpansion can be related to the use of non refined fibres and the low shrinkage phenomena (about 0.5%) that occurred for freely dried papers. These two conditions are not favourable to the formation of microcompressed regions or "skirts" (wrapped around bonds) [17] in fibre-to-fibre bond regions that would increase the stress transfer efficiency and then increase the influence of the transverse fibre hygroexpansion.

It is important to note that the dependence of the hygroexpansive properties with the density is rather weak (see Fig. 8.5) contrary to the influence of density on the hygromechanical properties (see for instance the previous Fig. 8.10). This suggests that the mechanisms controlling the elastic properties and the hygroexpansive properties are fundamentally different.
Finally, the observation of the large decrease of the papers' Young's moduli with the moisture content increase cannot be related to the microstructure parameters that were measured at the fibre scale. Obviously, it seems reasonable to consider that the action of moisture the mechanical properties of papers is mainly related to the action on moisture on the physical (decrease of glass transition temperature) and mechanical properties of the polymeric components of fibres and bonds that is particularly marked for moisture content about 7% [11, 10]. However such mechanisms cannot explain why there is a sudden drop of the Young's modulus (see Fig.8.10(b)) and the parameter A for papers having large density: the decrease of this parameter might be related to a change in bonds' properties that would become increasingly apparent as their number increases with the density. To better understand this phenomenon, it would be interesting to better visualise and characterise individual fibre-to-fibre bond regions. If it would be possible, one would certainly observe that existing bonds might open, whereas new bonds or contact zones might also form due to the observed deformation of fibres with moistening.

Bibliography

[1] C. Fellers, The interaction of paper with water vapour, in: Pulp and Paper Chemistry and Technology, Paper Products Physics and Technology Vol. 4, de Gruyter, Berlin, Germany, 109–167, 2009.

[2] V. L. Byrd, Effect of relative humidity changes during creep on handsheet paper properties, Tappi 55(2):247–252, 1972.

[3] H. W. Haslach, Moisture accelerated creep, in Handbook of Physical Testing of Paper Vol. 1, CRC Press; 2nd edition, New York, p173, 2001.

[4] T. Uesaka, C. Moss, Y. Nanri, The characterization of hygroexpansity of paper, J. Pulp Paper Sci., 18(1), J11-J16, 1992.

[5] C. E. Courchene, G. F. Peter, J. Litvay, Cellulose microfibril angle as a determinant of paper strength and hygroexpansivity in Pinus Taeda L., Wood Fiber Sci., 38(1): 112–120, 2006.

[6] I. Kajanto, K. Niskanen, Optical measurement of dimensional stability, Progress in paper physics - a seminar, SFTI, Stockholm p 75, 1996.

[7] Y. Nanri, T. Uesaka, Dimensionaal stability of mechanical pulps - drying shrinkage and hygroexpansivity, Tappi 76(6):62–66, 1993.

[8] D. H. Page, P. A. Tydeman, A new theory of the shrinkage, structure and properties of paper, In: The Formation and Structure of Paper, Vol. 2, F. Bolam, ed., British Paper and Board Makers Assoc., London, 397–413, 1962.

[9] R. E. Benson, Effects of relative humidity and temperature on tensile stress-strain properties of kraft linerboard, Tappi, 54(4):699–703, 1971.

[10] N.L. Salmén, E.L. Back, Moisture-dependent thermal softening of paper, evaluated by its elastic modulus, Tappi, 63(6), 117–120, 1980.

[11] A. de Ruvo, R. Lundberg, S. Martin-Löf, C. Söremark, Influence of temperature and humidity on the elastic and expansional properties of paper and the constituent fibre. In The Fundamental Properties of Paper Related to its Uses, Trans. Vth Fund. Res. Symp. Cambridge, 1973, (F. Bolam, ed.), pp 785–806, FRC, Manchester, 2003. ISBN: 0 9541126 5 2.

[12] L. Salmén, R. Boman, C. Fellers, M. Htun, The implications of fiber and sheet structure for the hygroexpansivity of paper, Nord. Pulp Pap. Res. J., 4, 127–131, 1987.

[13] L. Salmén, C. Fellers, M. Htun, The in-plane and out-of-plane hygroexpansional properties of papers. In Papermaking Raw Materials, Trans. VIIIth Fund. Res. Symp. Oxford, 1985, (V. Punton, ed.), pp 511–527, FRC, Manchester, 2003, ISBN: 0 9541126 8 7.

[14] P.A. Larsson, L. Wågberg, Influence of fibre-fibre joint properties on the dimensional stability of paper, Cellulose, 15, 515–525, 2008.

[15] I. Pulkkinen, J. Fiskari, V. Alopaeus, The effect of hardwood fiber morphology on the hygroexpansivity of paper, BioResources, 4(1), 126–141, 2009.

[16] T. Uesaka, C. Moss, et Y. Nanri, The characterization of hygroexpansivity in paper,International Paper Physics Conference Proceedings, Atlanta, GA, Tappi,613–622, 1991.

[17] T. Uesaka, D. Qi, Hygroexpansivity of paper : effects of fiber-to-fiber bonding, J. Pulp Paper Sci., 20(6):J175-J179, 1994.

[18] T. Uesaka, Environmental effects of paper properties. In Handbook of Physical Testing of Paper, Volume 1, Second Edition, Revised and Expanded, Richard E. Mark, Charles C. Habeger, Jr., Jens Borch and M. Bruce Lyne (eds). Marcel Dekker, Inc.: New York, 2002; 115–171.

[19] T. Uesaka, General formula for hygroexpansion of paper, J. Mater. Sci., 29, 2373–2377, 1994.

[20] L. Salmén, C. Fellers, The nature of volume hygroexpansivity of paper, J. Pulp Paper Sci. 15(2), J63–J65, 1989.

[21] J. Viguié, P. J. J. Dumont, E. Mauret, S. Rolland du Roscoat, P. Vacher, I. Desloges, J. F. Bloch, Analysis of the hygroexpansion of a lignocellulosic fibrous material by digital correlation images obtained by X-ray synchrotron microtomography: application to a folding box board, J. Mater. Sci., 46(14), 4756–4769, 2011.

[22] T. Uesaka, C. Moss, Effects of fibre morphology on hygroexpansivity of paper - A micromechanics approach. In The Fundamentals of Papermaking Materials, Trans. XIth

Fund. Res. Symp. Cambridge, 1997, (C.F. Baker, ed.), pp 663–679, FRC, Manchester, 2003. ISBN: 0 9545272 1 6.

[23] I. Kajanto, K. Niskanen, Dimensional stability. In Papermaking Science and Technology, Book 16, Paper Physics. Fapet Oy, Helsinki, 1998.

[24] J. F. Waterhouse, Residual stresses in paper anf board, in Handbook of Physical Testing of Paper Vol. 1, CRC Press; 2nd edition, New York, p527, 2001.

Partie IV

Volumes élémentaires représentatifs des propriétés microstructurales et élastiques des réseaux fibreux

Chapitre 9

Representative Elementary Volumes of model papers for the fibre volume fraction

Résumé

L'objectif de l'étude traitée dans ce chapitre est d'estimer la taille des Volumes Élémentaire Représentatifs (VER) à cœur des papiers modèles pour leur fraction volumique de fibres et en fonction de leurs conditions d'élaboration (formation, pressage et séchage). L'approche adoptée est proche de celle précédemment mise en œuvre par Rolland du Roscoat et al. [1] pour l'analyse de VER de propriétés microstructurales de divers papiers à partir d'images de leur microstructure fibreuse acquise par microtomographie à rayons X. Elle s'inspire également des travaux récents de Dirrenberger [4] concernant la détermination de VER statistiques pour les propriétés morphologiques et physiques des réseaux de fibres. Cette dernière approche a été choisie car elle donne une signification claire à la notion de VER [5, 4, 5]. La taille des VER statistiques ainsi déterminée est ensuite comparée aux longueurs de covariance de la phase fibreuse mesurée dans le plan des papiers modèles, ces longueurs dépendant elles-mêmes des conditions d'élaboration des papiers.

9.1 Introduction

The manufacturing conditions of papers and paperboards (forming, pressing and drying) have a primary influence on their microstructural properties which in turn affect their physical and mechanical properties. Such microstructural or physical properties can be estimated

from micrographs, provides that the size of the analysed microstructure volumes are representative for the studied property. In this chapter, the objective is to determine the Representative Elementary Volume of the bulk part of model papers for their fibre content as a function of their processing conditions, *i.e.* formation which controls the in-plane fibre orientation, pressing and drying conditions. The analysis is based on the use of 3D images of model papers obtained from X-ray microtomography using a similar approach to the study proposed by Rolland du Roscoat et al. [1]. It also relies on the recent work by Dirrenberger [4] that concerns the determination of statistical RVE's for the morphological and physical properties of virtual fibrous networks with interpenetrated fibres. Such approach was chosen as it gives a clear definition of the concept of RVE [5, 4, 5]. The determined size for the fibre volume fraction RVE's is then compared with the covariance lengths measured within the plane of paper models. The covariance lengths are found to be themselves dependent of processing conditions.

9.2 Model papers and X-ray microtomography images

The model papers described in the previous chapters were used for this study as well as their X-ray microtomography images (voxel size of 0.7 μm × 0.7 μm × 0.7 μm). The used binarised images were obtained following the procedure described in the previous chapters using square specimens with side dimensions equal to 1.4 mm. Note that in the binarised images shown in Figs. 9.3 and 9.1 the fibrous phase is white whereas the porous phase is black. The great interest of the use of such images is that the morphology and the topology of the microstructures contained in the binarised images contains "necessary" the whole of the complexity of paper microstructures.

9.3 Estimation of microstructural properties

9.3.1 Volume fraction

Two different volume fraction descriptors were used in this study:

- The local fibre content profile 1-$\phi(z/e)$ along the thickness within image sub-volumes of each paper specimen was determined as the ratio between the number of white pixels and the total number of pixels of each slice of the considered image. Each fibre content profile was plotted as a function of the paper normalised thickness z/e, where e is the thickness of the bulk part of paper (see definition below). This normalisation was done to easily compare specimens having different thickness. For a proper image analysis, note that the upper and lower sides of the specimens had to be normal to the z-axis to avoid distorting the profiles: i.e. the specimens had to be flat and/or not to be

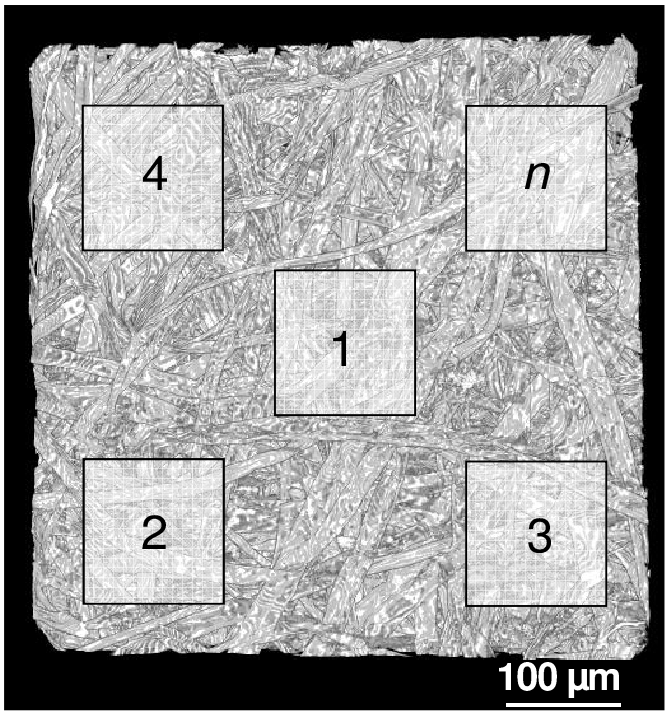


Figure 9.1: Selection of n non-overlapping sub-volumes for the fibre content measurements.

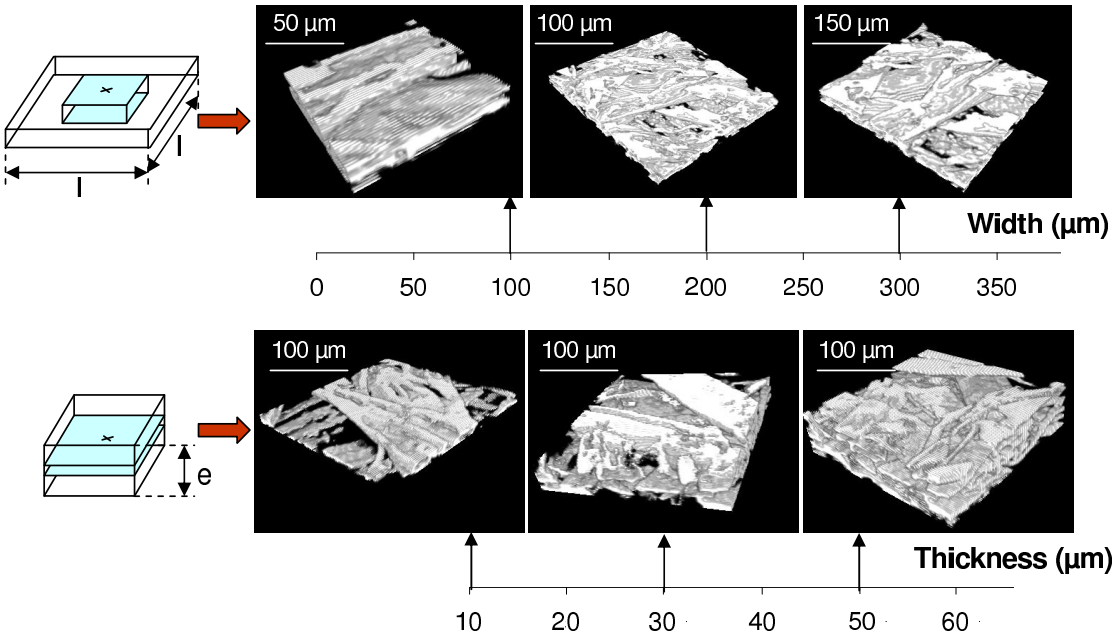


Figure 9.2: Illustration of the growth of sub-volumes(same centre) for fibre content measurement.

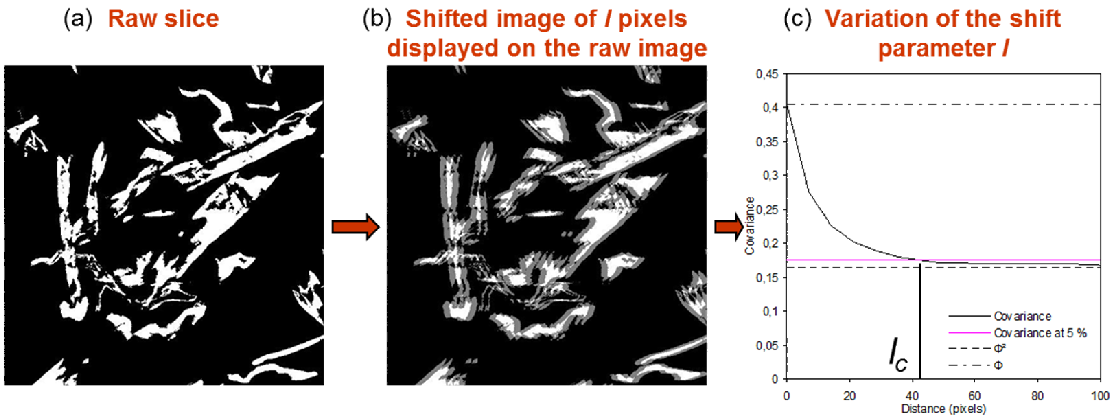


Figure 9.3: Method used to measure the covariance on 3D segmented images and to build the corresponding covariogram by shifting the image along a (horizontal in this case) vector l.

tilted: when necessary, some images were post-treated to fulfill this requirement.

- The overall mesoscale fibre content 1-ϕ_X was estimated as the ratio between the number of white voxels and the total number of voxels within the considered sub-volumes.

To measure the above fibre contents, the binarised images were divided into n non-overlapping sub-volumes V; as represented in Fig. 9.1. The size of each sub-volume was also varied by changing its width and/or its thickness as displayed in Fig. 9.2.

9.3.2 Covariance length

The covariance is characteristic of the size and of the arrangement of connected objects building a considered phase. The covariance of the set X, for instance the fibrous phase, is the probability for points x and $x+l$, where l is the separation between the two points, to belong to the set X [6]. When the covariance is evaluated from the images of fibrous networks inside a mask Z, it writes [7]:

$$C(X,l) = A_A E^l(X \cap Z) \tag{9.1}$$

where A_A is the surface (or volume) fraction of $X \cap Z$, $E^l(X \cap Z)$ is the erosion by a bipoint $\{0,l\}$ of the set $X \cap Z$. The theorem of the measurement [7] mask gives:

$$C(X,l) = \frac{A[E^l(X) \cap E^l(Z)]}{A[E^l(Z)]}, \tag{9.2}$$

where $A[.]$ is a measure.

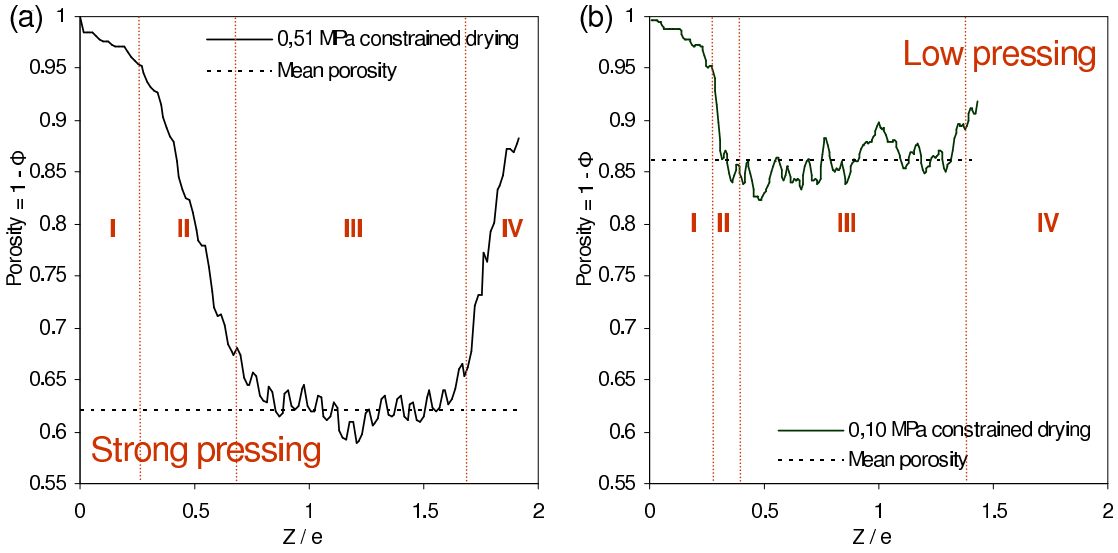


Figure 9.4: Porosity profile (1-ϕ_f)as a function of the normalised thickness z/e for isotropic papers dried under constraint and wet pressed at (a) high packing stress (0.51 MPa) and (b) at a low packing stress (0.10 MPa).

The evaluation method of the covariance from images consisted of shifting the mask Z of l pixels in one given direction l, as illustrated in Fig. 9.3. This operation resulted in an image containing black, gray and white pixels. The covariance of the fibrous phase was obtained by dividing the number of white pixels of the fibre phase (i.e. the set $\mathrm{E}^l(X) \cap \mathrm{E}^l(Z)$) by the total number of pixels of the set $\mathrm{E}^l(Z)$.
For $l = 0$, the covariance is equal to the volume fraction ϕ_f of the fibrous phase. Furthermore, in the case of disordered microstructures, $\lim_{l\to\infty} \mathrm{C}(X,l) = (A_A(X))^2$. Under such circumstances, it is also possible to define a characteristic covariance length l_c above which it can be considered that the shifted mask and the scrutinised zone are uncorrelated. In this work, as illustrated in Fig. 9.3, l_c was determined as the length l for which the covariance reached $\phi_f^2 + 5\%$ of the difference between ϕ_f and ϕ_f^2. The size and the position of the masks were varied within the (x, y) plane as well as through the thickness z of the images.

9.4 Preliminary results

9.4.1 Through-thickness fibre content profiles

The porosity profiles 1-$\phi(z/e)$ displayed in Figs 9.4(a,b) show four distinct regions regardless of the manufacturing conditions of considered papers:

- Zone I is composed of sparse fibres emerging from the specimens' surface. These fibres

are naturally present or emerge when cutting papers into square specimens.

- Zone II corresponds to the upper side of the specimen. It exhibits an abrupt slope if the specimen is well positioned on the sample holder during scanning; i.e. normal to the rotational axis of the sample holder, or if it is not curled or twisted. Note the difference of porosity profiles between the two specimens in Figs. 9.4(a) and 9.4(b): the low pressed specimen was either better positioned or its surface was less damaged than the strongly pressed specimen.

- Zone III corresponds to the largest part of the paper specimens: it is considered as their bulk parts. The porosity and the fibre content within this part slightly fluctuates and may exhibit a slight deviation (see Fig. 9.4). The dotted lines shown in Figs. 9.4(a,b) correspond the average values of porosity within the bulk part of specimens. The thickness of this zone is denoted e.

- Zone IV corresponds to the interface between the bottom paper surface and the substrate surface (Post-it) which is used to hold the paper specimen during X-ray microtomography tests. This zone it not exploited.

In what follows, it is important to note that only the bulk part (Zone III) of the specimens is considered for the subsequent structural analyses.

9.5 Results

9.5.1 In-plane isotropic papers: covariance length of the fibrous phase

As revealed from the graph of Fig. 9.5(a), the covariances of the fibrous phase calculated for several in-plane directions of an in-plane isotropic paper are nearly superimposed. The in-plane covariance length is l_{cxy}=25 μm. Compared with results plotted in Fig. 9.5(b) which gives the evolution of the covariance along z-direction, the covariance length l_{cxy} is 5 times greater than l_{cz} = 5 μm. This indicates a pronounced transverse isotropic microstructure of paper. For all tested in-plane isotropic papers, results showed similar trends.

Influence of paper processing conditions

Tab. 9.1 gives the covariance lengths as a function of the manufacturing operations in the case of in-plane isotropic papers. The following comments can be done:

- For a given wet pressing stress, the in-plane covariance lengths are slightly higher in the constrained drying conditions.

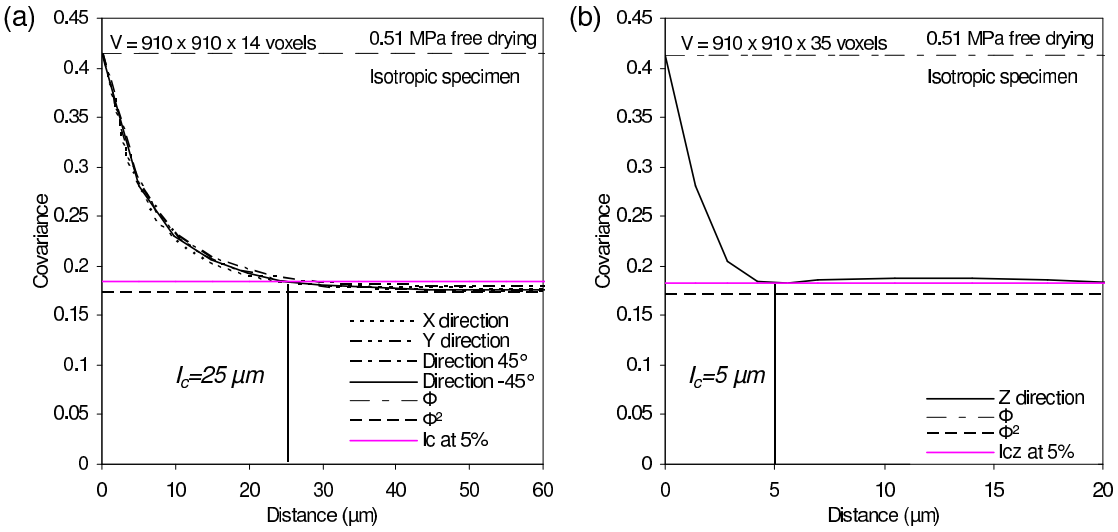


Figure 9.5: Covariograms of isotropic specimens wet pressed at 0.51 MPa and freely dried in (a) the $(\boldsymbol{e}_x, \boldsymbol{e}_y)$ plane and (b) the thickness along $\boldsymbol{e}_z$ of the studied specimen.

Pressing	0.10 MPa		0.51 MPa	
Drying	F	C	F	C
Covariance length l_{cxy} (μm) in the (x, y) plane	18	25	28	30
Covariance length l_{cz} (μm) in the thickness	6	3	4	4
REV length (μm) in the (x, y) plane	175	140	175	175

Table 9.1: Covariance lengths and side dimensions of REV (in regards of ϕ as a function of the manufacturing operations in the case of in-plane isotropic papers ("F" stands for free drying and "C" stands for constrained drying).

- For a given drying condition, the covariance lengths are higher for high pressing conditions.

- Moreover the higher l_{cxy}, the lower l_{cz}.
  Even if data should be confirmed by additional measurement, the two last points may be related to the morphology of fibres: as the wet pressing is increased fibres "flattened" (see also chapter 7) in the network and their in-plane fibre orientation is enhanced.

9.5.2 In-plane anisotropic papers: covariance length of the fibrous phase

Fig. 9.6 displays the distribution of covariance lengths l_c measured in several directions in the plane of two anisotropic (freely and constrained) dried papers. The covariance length clearly depends on the direction along with it is estimated (with respect to the paper machine direction). Regardless of the type of drying conditions, the same kind of covariance length distributions can be observed, with a ratio between l_{cMD} and l_{cCD} of ≈ 2. Such distribution is

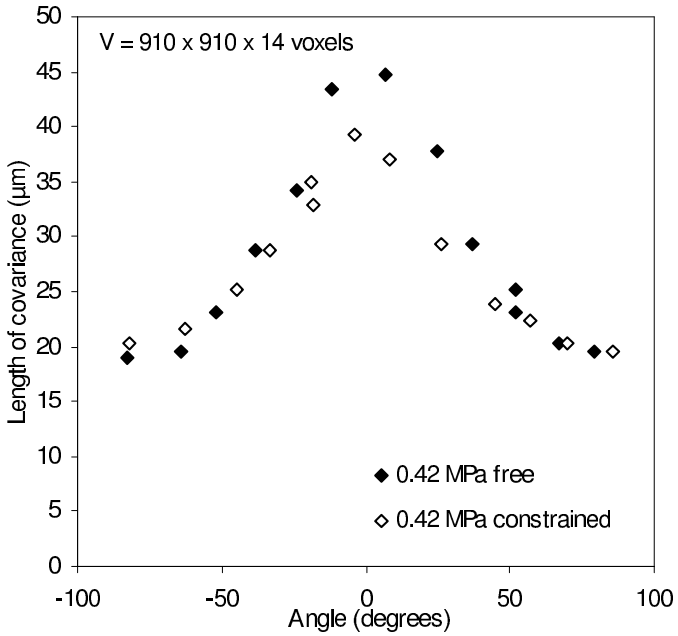


Figure 9.6: Distribution of covariance lengths of a freely and a constrained orientated sample pressed at 0.42 MPa as a function of the angle with respect to the machine direction.

more or less similar to the fibre orientation distributions that was measured for papers materials (see chapter 5). Then, as expected, the study of the covariance lengths in the plane of papers is useful to characterise semi quantitatively the microstructural anisotropy of papers related to fibre orientation. Thus this result supplements the demonstration of the interest of the covariance length as descriptors of paper microstructures as shown in [1]. However, it is important to notice that these two descriptors are not equivalent. For example, bonding zones are included in the calculation of l_c, whereas they must not be taken into account for the estimation of the fibre orientation.

Influence of paper processing conditions

Tab. 9.2 gives the covariance lengths measured for the fibrous phase as a function of the manufacturing operation in the case of in-plane anisotropic papers.

- Contrary to in-plane isotropic papers, the in-plane covariance lengths l_{cxy} decreases for papers that were subjected to an increasing wet pressing stress. This trend is observed both in the machine directions (MD) and in the cross direction (CD). This difference was rather unexpected but might reveal a difference in the packing mechanisms between both types of fibrous networks. Note that specific microstructural features for

Pressing	0.11 MPa		0.42 MPa		0.87 MPa	
Drying	F	C	F	C	F	C
Covariance length l_{cxy} (μm) in the (x, y) plane (MD/CD)	51/28	43/31	45/19	40/20	32/16	27/18
Covariance length l_{cz} (μm) in the thickness	6	13	5	6	3.5	3
REV length (μm) in the (x, y) plane	280	420	140	140	210	140

Table 9.2: Covariance lengths and side dimensions of the REV (in regards of the fibre content ϕ as a function of the manufacturing operations in the case of in-plane orientated papers ("F" stands for free drying and "C" stands for constrained drying).

fibres and bonds had already been shown in chapter 7 for in-plane anisotropic fibrous networks. This trend is also accompanied by a decrease of the covariance length l_{cz} in the thickness of the samples. The latter is similar to what was observed for the in-plane isotropic papers.

- The effect of the drying conditions can also be observed: the in-plane covariance lengths in MD are higher in the case of free drying conditions compared to the case of constrained drying conditions, while no obvious difference is observed in CD. Note that the difference between the in-plane covariance lengths in MD is decreasing with the wet pressing stress increase. In other words, this shows that the drying conditions have a minor impact when the wet pressing stress is high, which confirms the low influence of drying conditions on the microstructural properties of model papers (see also the previous chapters).

9.5.3 Size of the REV of the fibre content

Thickness of the REV

The first step to determine the REV size consisted of giving an estimate of the minimum thickness t of this domain.
Fig. 9.7 shows the evolution of the porosity (and thus the fibre content) for several sub-volumes having the same centre and whose thickness t and side dimensions were varied in the case of a model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint. For a thickness $t \geq 14$ μm, which corresponds to $t = 2 \times l_{cz}$, and for side dimensions > 140 μm, it can be seen that the mean value of porosity does almost not depend on the length of the sub-volumes. For $t < l_{cz}$, it seems that the thickness of the sub-volumes is too close to the thickness of the fibre to measure a correct mean value of porosity. Thus this observation delivers a criterion for the minimum thickness $> 2l_{cz}$ of the REV. Note that the maximum thickness of the REV is given by the extent of the bulk zone of papers.

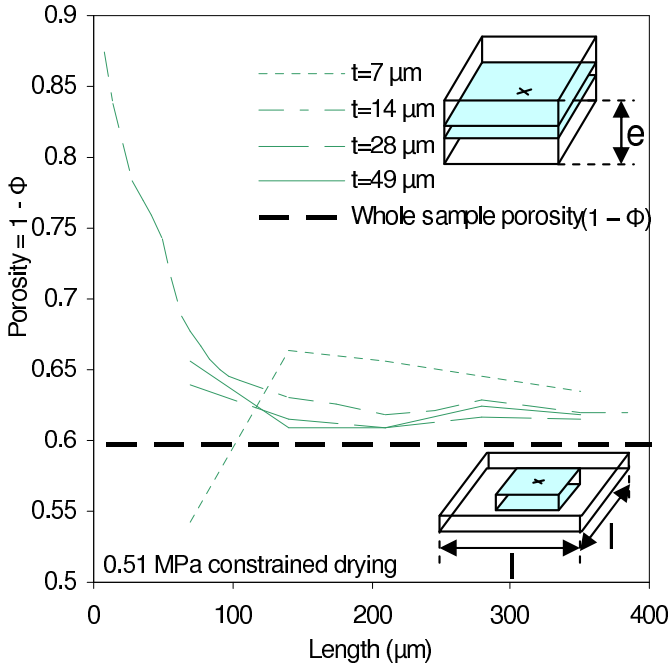


Figure 9.7: Evolution of the porosity of sub-volumes according to their size. Increasing size sub-volumes had the same centre. Case of an isotropic model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint.

The same observations were made for all papers having undergone different pressing and drying conditions. As previously observed in [1], these results also show that the porosity within the bulk of papers mainly depend on the dimensions of the sub-volumes in the plane (x, y).

In-plane length of REV

The porosity of several sub-volumes having different centres has thus been followed for $t = 2l_{cz}$ by varying the dimensions of the sub-volumes in the plane (x, y):

- The porosity of each sub-volume stabilises around 140 μm as illustrated in Fig. 9.8 for the case of an isotropic sample pressed at 0.51 MPa and dried under constraint. This dimension corresponds to about $6l_{cxy}$. For all in-plane isotropic papers, the same observation was made (see Tab. 9.1).
- It appears that the mean fibre content value calculated from the measurements obtained from 5 sub-volumes of increasing dimensions converges towards to the fibre content (≈ 0.4) obtained for the whole image. In that case, sub-volumes having side dimensions about 100 μm are necessary to obtain a mean value close to this porosity. Increasing the dimensions of the sub-volumes results in a decrease of the standard

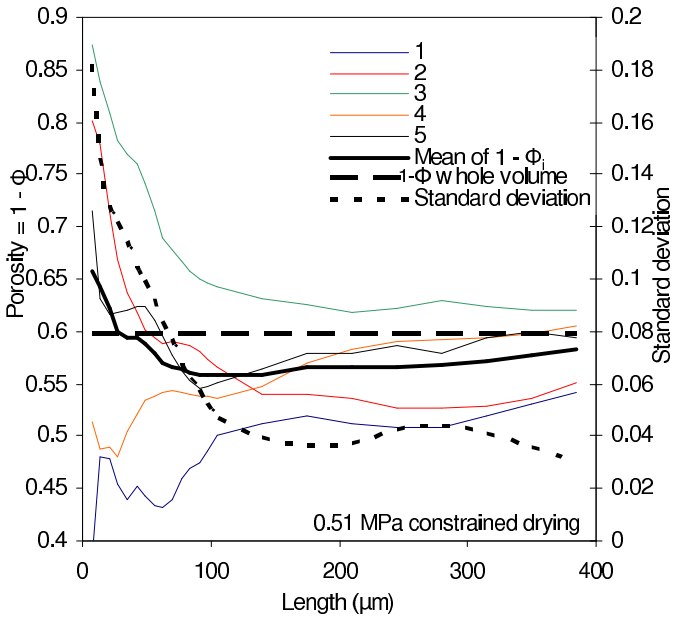


Figure 9.8: Evolution of the porosity of 5 sub-volumes based on the same centre according to their size for t=14 μm, and related mean value and standard deviation of the 5 curves. Case of an isotropic model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint.

deviation of the porosity which tends to stabilise around 0.04. Then provided that a sufficient, but limited, number of small sub-volumes is used and provided that their size is sufficient, the mean value of the porosity is representative of the value obtained for large volumes.

- Concerning the orientated samples, it was observed that the porosity stabilisation appears for $3l_{cMD}$ for some of the papers and more generally for $6l_{cMD}$, which corresponds to about $13l_{cCD}$.

In a recent review, Jeulin [5] highlights that the problem of the size of the REV of physical property Z can be treated in the framework of a probabilistic approach. This approach gives size-dependent intervals of confidence for the estimate of the mean value of Z. Theoretically, Elementary Volume (EV) of a volume V is a REV for the property Z, the dispersion must vanish [5].
The approach is based on the size-dependence of the variance $D_Z^2(V)$ of the effective property. It can be shown [5] that the relative error ε_{rela} on the estimate of the effective mean value $< Z >$ of the property Z obtained with n independent realizations of volume V is written:

$$\varepsilon_{rela} = \frac{2D_Z(V)}{< Z > \sqrt{n}}. \tag{9.3}$$

The variance $D_Z^2(V)$ can be defined as a function of the size of volume V. The following empirical relationship is proposed in [4]:

$$D_Z^2(V) = KV^{-\gamma}, \tag{9.4}$$

where K and γ are two parameters to be identified. For microstructures with short range correlations $\gamma = 1$ while for microstructures with long range correlations $\gamma < 1$. Theoretical values for γ can be found in [5] for various models of media.
Following this approach the size V of a "statistical" REV for the fibre content can be written as follows

$$V(n, \varepsilon_{rela}) = \left(\frac{4K}{n < \Phi >^2 \varepsilon_{rela}^2} \right)^{\frac{1}{\gamma}}, \tag{9.5}$$

where $< \Phi >$ is the exact mean value of the porosity.
Using our experimental measurements of fibre content for various sub-volumes having different sizes, we estimated the side dimensions of the porosity REV for $n = 3$ and $\varepsilon_{rela} = 10\%$. We considered that the fibre content $< \Phi >$ was given by the porosity measured for the whole scanned image. Note that such way for the estimation of this parameter could induce a bias in the method [5]. We found that the best empirical fits gave $\gamma = 0.5$; i.e. showing long range correlation for the porosity property in the studied papers which appears as a surprising result. The corresponding REV in-plane dimensions are given in Tab. 9.1 for in-plane isotropic papers and in Tab. 9.2 for in-plane orientated papers. Results show that the REV size is moderately dependent of the manufacturing operations except at low pressing conditions for in-plane anisotropic papers. It can be observed that the side dimensions of the REV roughly corresponds to about 3 to 10 times the size of the covariance length $ł_{cxy}$.

9.6 Conclusion

The main results of this study show that it is possible using x-ray microtomography images of papers, i.e. relatively small samples of such materials, to estimate the dimensions of the REV with respect to the fibre content for a given relative error of 10 %. Furthermore the maximum REV thickness is bounded by the thickness of the bulk zone of papers. It was also shown that it is possible to relate the REV dimensions to the covariance lengths which are themselves dependent on the paper manufacturing conditions.

Bibliography

[1] Rolland du Roscoat, S., Decain, M., Thibault, X., Geindreau, G., Bloch, J.-F., Estimation of microstructural properties from synchrotron X-ray microtomography and determination of the REV in paper materials, Acta Mater.,55, 2841–2850 (2007).

[2] Dirrenberger, J., Effective properties of architectured materials, PhD Thesis ParisTech (2012).

[3] Kanit T, Forest S., Galliet I., Mounoury V., Jeulin D., Determination of the size of the representative element for random composites: statistical and numerical approach, Int. J. Solids Struct., 40, 3647–3679 (2003).

[4] Gitman I.M., Askes H., Sluys L.J., Representative volume: Existence and size determination, Eng. Frac. Mech., 74, 2518–2534 (2007).

[5] Jeulin D., Morphology and effective properties of multi-scale random sets: A review, C. R. Mecanique, 340, 219–229 (2012).

[6] Jeulin D., Caractérisation morphologique et modèles de structures aléatoires, Extrait de : Homogénéisation en mécanique des matériaux (tome1). Hermès, France, 2001.

[7] Mering C. Présentation de quelques méthodes de la morphologie mathématique permettant de caractériser une structure sur une image binaire. In : Pouget Marcel (ed.), Mering Catherine (ed.), Andrianasolo Haja (ed.). Images satellite et milieux terrestres en régions arides et tropicales. Paris : ORSTOM, 1990, p. 193-211. (Colloques et Séminaires). Journées Télédétection, Bondy (FRA), 1988/11/14-17. ISBN 2-7099-0983-9

Chapitre 10

REV for the elastic properties of model papers

Résumé

À la suite de l'étude concernant la détermination des VER pour la fraction volumique de fibres des papiers modèles, nous cherchons ici à connaître la taille nécessaire des VER pour prévoir, à une précision donnée, leurs propriétés élastiques effectives. Pour cela, une méthode de simulation numérique «volumique» s'appuyant sur la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques multi-échelles [23] a été utilisée. Des volumes extraits d'images obtenues par microtomographie à rayons X des papiers ont été utilisées comme supports des calculs permettant l'estimation de leurs coefficients élastiques par un code de simulation de type volumes finis dédié. En adoptant cette méthode de détermination des propriétés effectives des papiers, cette étude entre dans la ligne des travaux menés lors la thèse de Decain [3] concernant l'estimation des propriétés macroscopiques de conductivité thermique et de perméabilité de divers papiers. Le suivi de la stabilisation des coefficients élastiques en fonction de la taille des différents volumes utilisés a permis d'estimer la taille des VER «statistiques» pour les propriétés élastiques effectives pour les papiers modèles en s'appuyant pour cela sur l'approche proposée par Kanit et al. [5] et Dirrenberger [4].

10.1 Introduction

In order to complete the study performed in the previous chapter for the determination of REVs for the fibre volume fraction of model papers, we sought here the needed size of REVs to predict with a given precision their elastic properties. For that purpose, a numerical sim-

ulation method was used by solving on real elementary volumes localisation problem directly arising from the theoretical developments proposed by the homogenisation method with multiple scales asymptotic expansions [23, 2]. Thuse volumes extracted from X-ray images of model papers were used as input in a finite volume simulation code to calculate their macroscale elastic stiffness. Regarding this aspect this approach resembles to the former study developed in Decain [3] dealing with the predictions of thermal conductivity and permeability properties of several papers. Studying the stabilisation of elastic coefficients with the increase of the volume size allowed the size of "statistical" REVs for the effective elastic properties of model papers to be estimated, relying for that on the approaches proposed by Kanit et al. [5] and Dirrenberger [4].

10.2 Homogenisation

The method used here to compute the macroscale elastic stiffness tensor $\boldsymbol{C}$ of model papers relies on the use of volumes V extracted from X-ray microtomography images of model papers. The same images as in the previous chapters were used here. The determination of the components of this tensor is made in the framework of the the homogenisation method of multiple scale expansions for periodic structures [3, 23, 2] that is briefly described below.

10.2.1 Microstructural assumptions

At the microscale, several assumptions are made regarding the structure of the model papers:

- Papers are seen as periodic porous fibrous media with a thickness $h \approx 50-200$ μm and a characteristic in plane length $L \approx 0.1-10$ m.
- The characteristic length of the fibrous phase is considered as being given by the in plane covariance length $l \approx l_{cxy} \approx 15-60$ μm, which gives the following good scale separation condition:

$$\epsilon = \frac{l}{L} \ll 1. \tag{10.1}$$

Then the local mechanical equilibrium is briefly described below. In the fibrous phase, it writes:

$$\boldsymbol{div}\,\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0}, \tag{10.2}$$

where $\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{c} : \boldsymbol{\varepsilon}$ is the Cauchy stress tensor, $\boldsymbol{c}$ is the local elastic stiffness tensor and $\boldsymbol{\varepsilon}$ the strain tensor in the fibrous phase. Furthermore, at the interface between the fibrous phase

and air the following boundary conditions holds for the normal stress components:

$$\boldsymbol{\sigma}.\boldsymbol{n} = \mathbf{0}, \tag{10.3}$$

where $\boldsymbol{n}$ is the normal unit vector. At the interface between fibres, the continuity of displacement $\boldsymbol{u}$ is considered. It writes:

$$[\boldsymbol{u}].\boldsymbol{n} = \mathbf{0}. \tag{10.4}$$

In what follows the fibre phase is considered as an isotropic porous elastic material with a Young's modulus of 1 GPa and a Poisson's ratio of 0.3. These choices are fully arbitrary and will be discussed hereafter.

10.2.2 Upscaling

Combined with the scale separation condition, the periodicity condition enables one to write the displacement $\boldsymbol{u}$ as asymptotic expansions in powers of the scale separation parameter ϵ such as

$$\boldsymbol{u}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y}) = \boldsymbol{u}^{(0)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y}) + \epsilon\boldsymbol{u}^{(1)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y}) + \epsilon^2\boldsymbol{u}^{(2)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y}) + ... \tag{10.5}$$

where $\boldsymbol{x} = \boldsymbol{X}/L$ and $\boldsymbol{y} = \boldsymbol{X}/l$ are two dimensionless space variables and $\boldsymbol{u}^{(i)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y})$ are $\boldsymbol{y}-$periodic functions.

By introducing these fields in the local equilibrium equation 10.2.1 and by identifying the boundary values problems at various orders of ϵ, it can be shown that the equivalent macroscale continuum is a standard Cauchy medium with a symmetric Cauchy stress tensor $\langle\boldsymbol{\sigma}\rangle$:

$$\boldsymbol{div}\langle\boldsymbol{\sigma}\rangle = \mathbf{0}, \tag{10.6}$$

where the macroscale stress tensor writes:

$$\langle\boldsymbol{\sigma}\rangle = \boldsymbol{C} : \boldsymbol{\varepsilon}^{(0)}, \tag{10.7}$$

with

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{(0)} = \frac{1}{2}\left(\boldsymbol{grad}_{\boldsymbol{X}}\,\boldsymbol{u}^{(0)} + {}^{T}\boldsymbol{grad}_{\boldsymbol{X}}\,\boldsymbol{u}^{(0)}\right), \tag{10.8}$$

$$\langle\boldsymbol{\sigma}\rangle = \frac{1}{V}\int_{V}\boldsymbol{\sigma}\,dV. \tag{10.9}$$

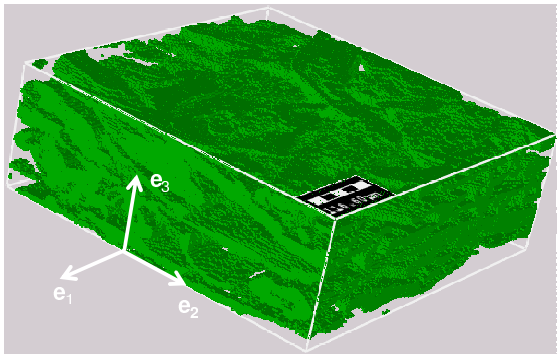


Figure 10.1: View of a volume used in Geodict simulations.

with V an elementary volume, and $\boldsymbol{C}$ the sought equivalent stiffness tensor.
The corresponding localisation problem to be solved on elementary volumes V to compute $\boldsymbol{u}^{(1)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y})$ and $\boldsymbol{C}$ on elementary volumes when imposing a given macroscopic strain tensor $\boldsymbol{\varepsilon}^{(0)}$ writes:

$$\boldsymbol{div}\,\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0} \text{ in the fibrous phase} \tag{10.10}$$

with

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{c} : \boldsymbol{\varepsilon}^{(1)}, \tag{10.11}$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{(1)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y}) = \boldsymbol{\varepsilon}^{(0)}(\boldsymbol{x}) + \frac{1}{2}\left(\boldsymbol{grad}_{\boldsymbol{y}}\,\boldsymbol{u}^{(1)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y}) + {}^{T}\boldsymbol{grad}_{\boldsymbol{y}}\,\boldsymbol{u}^{(1)}(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y})\right), \tag{10.12}$$

$$\boldsymbol{\sigma}.\boldsymbol{n} = \mathbf{0} \tag{10.13}$$

at the interface between the air and the fibrous phase, and

$$[\boldsymbol{u}^{(1)}].\boldsymbol{n} = \mathbf{0} \tag{10.14}$$

at the fibre contacts.

10.2.3 Practical determination of the components of the elastic stiffness tensor

Determining the elastic behaviour of the volumes consisted of obtaining the components of the elastic stiffness tensor $\boldsymbol{C}$:

$$\boldsymbol{C} = \begin{pmatrix} C_{1111} & C_{1122} & C_{1133} & C_{1123} & C_{1113} & C_{1112} \\ - & C_{2222} & C_{2233} & C_{2223} & C_{2213} & C_{2212} \\ - & - & C_{3333} & C_{3323} & C_{3313} & C_{3312} \\ - & - & - & C_{2323} & C_{2313} & C_{2312} \\ - & - & - & - & C_{1313} & C_{1312} \\ - & - & - & - & - & C_{1212} \end{pmatrix}. \tag{10.15}$$

For that the previously described localisation problem was solved using the commercial finite volume software Geodict. This software can directly use three-dimensional images to run the prescribed calculations (see Fig. 10.1): a voxel of images directly corresponds to a finite volume of the grid used to perform the numerical calculations. Periodic boundary conditions are also automatically prescribed in the software.
To prevent from unrealistic continuity of the fibrous phase along the fibre direction, layers of air were added on the upper and lower sides of each volume (thickness of two voxels).
The resulting elastic stiffness tensor $\boldsymbol{C}$ could be obtained both in the volume (or image) basis or in the principal mechanical basis To describe the possible rotation between the volume frame and the principal basis for the mechanical properties, the Euler's angles ψ, θ and ϕ were calculated as depicted in Fig. 10.2. Notice that six sequential calculations are required to build $\boldsymbol{C}$, corresponding to the six unit components of the macroscale tensor $\boldsymbol{\epsilon}$.

10.3 Size of the REV for linear elasticity

10.3.1 Influence of the volume thickness

The previous study has shown that there is a minimum thickness of the REV for the fibre volume fraction. It has also shown that its maximum thickness is bounded by the thickness of the bulk of paper. Similarly the thickness range of the REV for the elastic properties is sought here.
Fig. 10.3 shows the variations of the out-of-plane C_{3333} component of the stiffness tensor with the thickness of volumes of model papers. Several in plane side dimensions l of volumes varying from 70 μm to 280 μm were tested. As shown in this figure, there is an influence of the side dimensions of volumes on the evolution of C_{3333}. The largest variations of C_{3333} are indeed observed for volumes with in plane side dimensions l smaller than 280 μm $\times$ 280 μm. Nonetheless it is clear that there is no stabilisation of C_{3333} when increasing the thickness of

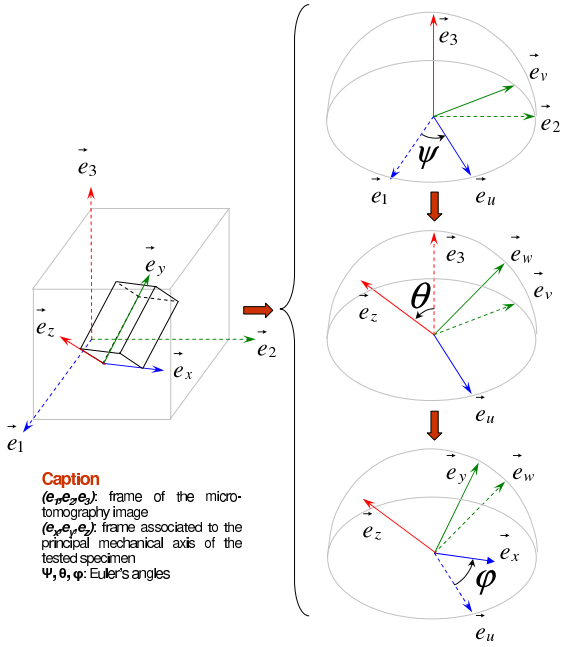


Figure 10.2: Description of the Euler's angles used to obtain the principal frame $(\boldsymbol{e}_x, \boldsymbol{e}_y, \boldsymbol{e}_z)$ attached to the mechanical directions of the studied specimen from the image frame $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2, \boldsymbol{e}_3)$.

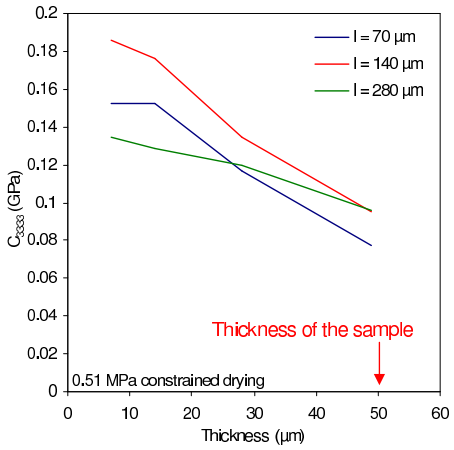


Figure 10.3: Elastic stiffness C_{3333} component as a function of the volume thickness. l represents the in plane side dimensions of volumes. Case of an isotropic model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint.

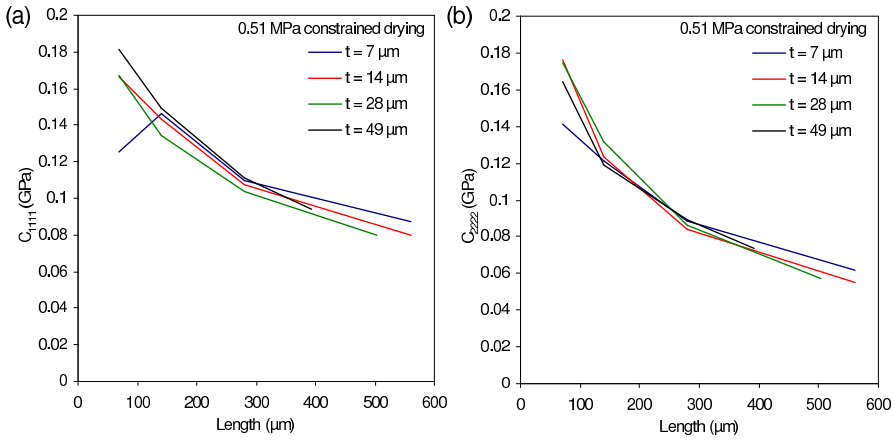


Figure 10.4: (a) C_{1111} and (b) C_{2222} as a function of the in plane dimensions and the thickness of volumes. Case of an isotropic model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint.

the studied volumes up to its maximum value corresponding to the thickness of the bulk of model papers. Such evolution can be observed whatever the side dimensions of tested volumes. This means that the concept of elasticity REV for the out-of-plane elasticity stiffness components is questionable for materials like papers. One has to admit that such REVs have a maximum thickness bounded by the thickness of the bulk of papers.
It is interesting to notice that the previous trend is different concerning the in-plane component of the stiffness tensor for which it is possible to define a criterion for a REV minimum thickness. Figs. 10.4(a) and 10.4(b) display the evolution of the components C_{1111} and C_{2222} of the stiffness tensor when varying both the thickness and the side dimensions of volumes. Whatever the volume thickness, the values of C_{1111} and C_{2222} decrease with the increase of the side dimensions l of tested volumes. Hence these properties depend on the volume size: this aspect is treated in the section below. Trends are similar except for small volume dimensions, i.e. side dimensions below ≈ 200 μm and thickness of $t = 7$ μm, which corresponds to $\approx 2l_{cz}$. Then a criterion for the minimum REV thickness for the in-plane stiffnesses can be defined as the thickness that avoids considering volumes where fibres are truncated (through their thickness). Therefore all treated volumes in the following will have a thickness equal to $2l_{cz}$.

10.3.2 In plane dimensions of the REV

Orthotropy of elastic properties

Papers from which the volumes were extracted exhibited orthotropic elastic behaviour for papers with in plane preferential fibre orientation or transverse isotropic elastic behaviour

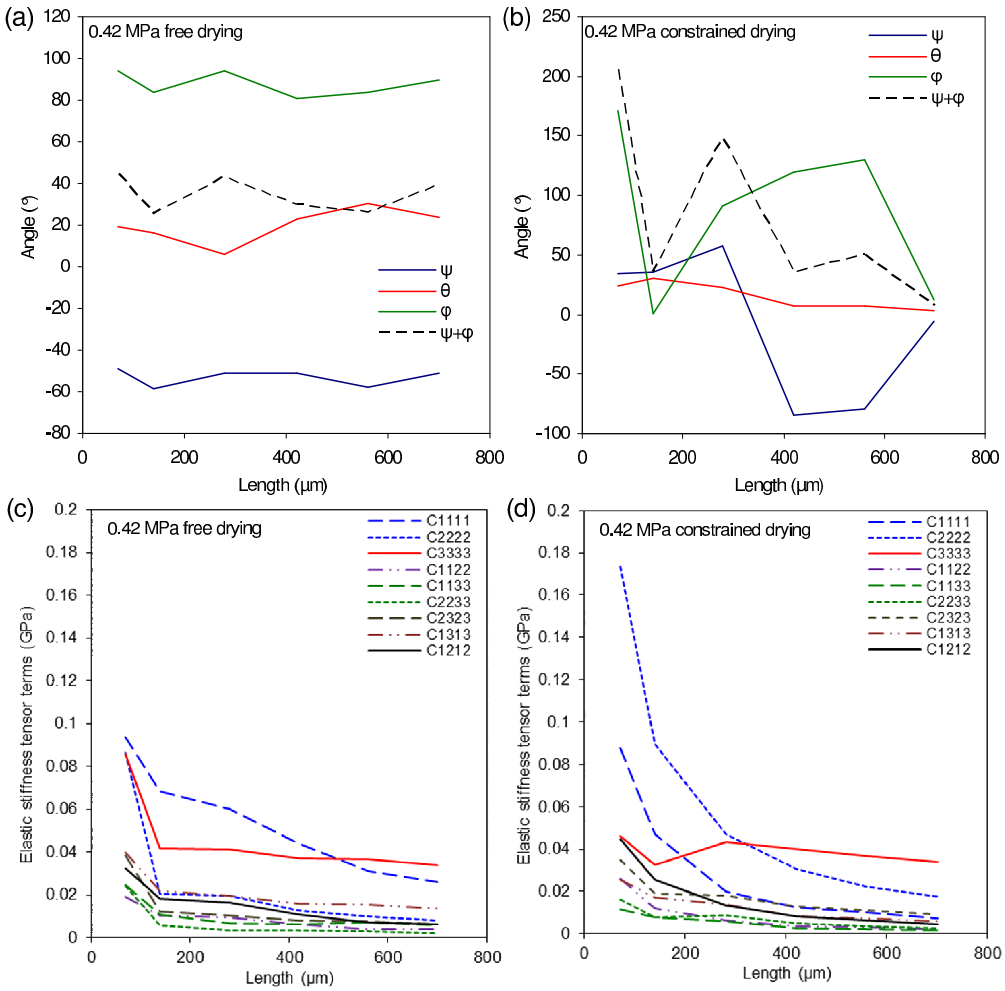


Figure 10.5: Euler's angles as a function of the side volume length for in plane orientated model paper pressed at 0.42 MPa, (a) dried freely, and (b) dried under constraint. Elastic stiffness tensor components C_{1111}, C_{2222}, C_{3333}, C_{1122}, C_{1133}, C_{2233}, C_{2323}, C_{1313} and C_{1212} expressed in the principal mechanical basis with respect to the side volume length for specimens taken from in plane fibre orientated model papers pressed at 0.42 MPa, (c) dried freely, and (d) dried under constraint.

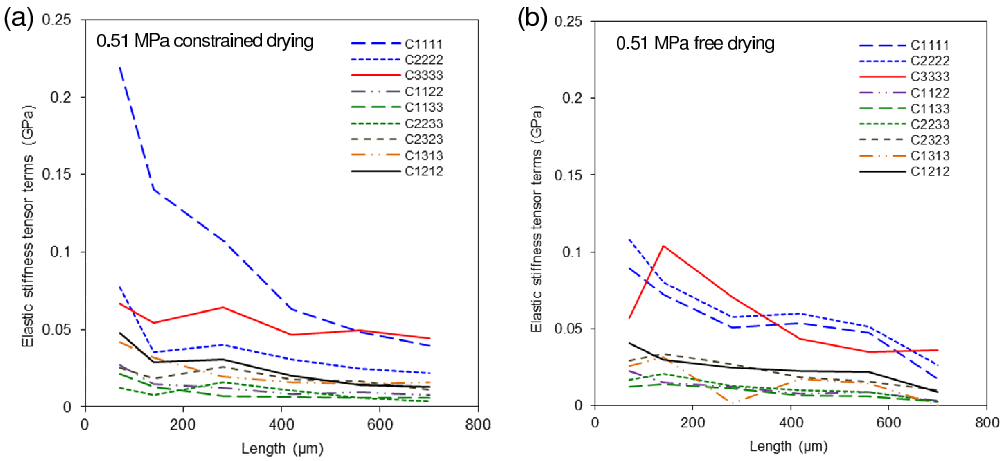


Figure 10.6: Elastic stiffness tensor components C_{1111}, C_{2222}, C_{3333}, C_{1122}, C_{1133}, C_{2233}, C_{2323}, C_{1313} and C_{1212} expressed in the principal mechanical basis with respect to the side volume length for specimens taken from in plane random fibre orientation model papers pressed at 0.51 MPa, (a) dried freely, and (b) dried under constraint.

for papers with in plane random fibre orientation. But small volumes extracted from those papers, especially the smallest ones, should not exhibit a priori such kind of mechanical behaviours. Therefore the evolution of the whole values of the stiffness tensor components C_{ijkl} was examined with respect to the volume size V together with the orientation of the principal mechanical frame with respect to the image frame.

Volumes extracted from papers with in plane preferential fibre orientation - For volumes taken from papers with in plane preferential fibre orientation, it was checked that with the increase of the size of volumes the stiffness tensor expressed in the principal mechanical basis was characteristic of an orthotropic behaviour, i.e. the components C_{1123}, C_{1113}, C_{1112}, C_{2223}, C_{2213}, C_{2212}, C_{3323}, C_{3313}, C_{3312}, C_{2313}, C_{2312}, C_{1312} became negligible (at least one order of magnitude lower) compared to the other components C_{1111}, C_{2222}, C_{3333}, C_{1122}, C_{1133}, C_{2233}, C_{2323}, C_{1313} and C_{1212}.
Then, for each volume, the remaining components of the stiffness tensor $\boldsymbol{C}$ in the principal mechanical basis are

$$\boldsymbol{C} = \begin{pmatrix} C_{1111} & C_{1122} & C_{1133} & \approx 0 & \approx 0 & \approx 0 \\ - & C_{2222} & C_{2233} & \approx 0 & \approx 0 & \approx 0 \\ - & - & C_{3333} & \approx 0 & \approx 0 & \approx 0 \\ - & - & - & C_{2323} & \approx 0 & \approx 0 \\ - & - & - & - & C_{1313} & \approx 0 \\ - & - & - & - & - & C_{1212} \end{pmatrix}. \tag{10.16}$$

Besides Figs. 10.5(a) and 10.5(b) show the Euler's angles that characterise the orientation between the image frame and the frame of mechanical principal directions as a function of the volumes' side dimensions l. The fluctuations of the angles tend to decrease for $l > 400$ μm, which corresponds to about 10 in-plane covariance lengths l_{cxy} measured in the machine direction of papers (see the previous chapter). The low values taken by the angle θ (between 0° and 25°) indicate that the $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ plane of the image frame is also a symmetry plane for the mechanical orthotropy. For the largest volumes, the sum $\psi + \phi$ allows the principal mechanical directions to be detected in the $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ plane of the image frame or (equivalently) the mechanical frame. These directions correspond to the the microstructural principal direction detected for instance by the covariance lengths (see Fig. 9.6 in the previous chapter), which shows that the microstructural principal directions and the mechanical principal directions approximately coincide for the largest volumes.
The evolution of the stiffness tensor components C_{ijkl} in the principal mechanical basis is represented with respect the volume size in Figs. 10.5(c) and 10.5(d). The apparent variations of the elastic stiffness components decrease from $l > 180$ μm in the case of free drying papers and from $l > 350$ μm for constrained drying papers, which corresponds to about 20 CD or 11 MD lengths of covariance l_{cxy}. However there is no clear stabilisation of the stiffness tensor components with the increase of the size of volumes: the considered volume sizes are certainly too limited to reveal any stabilisation of the components C_{ijkl}.

Volumes extracted from papers with in plane random fibre orientation - The same type of observations was made for papers with in plane random fibre orientation in Figs. 10.6(a) and 10.6(b). One might also assume that volumes extracted from such papers should exhibit a transverse isotropic behaviour, which would give $C_{1111} = C_{2222}$, $C_{1133} = C_{2233}$ and $C_{1313} = C_{2323}$. As previously observed in Figs 10.5(c) and 10.5(d), the elastic stiffness components shown in Figs. 10.6(a) and 10.6(b) decrease with the increase of the volume size. With the increase of the size of volumes, there are slight trends for C_{1111} to converge towards C_{2222}, C_{1133} towards C_{2233} and C_{1313} towards C_{2323} for the constrained dried paper. These trends are more pronounced for the freely dried paper. However these two examples show that the convergence is not complete. Again the volume size is probably too limited to reveal such expected behaviour.

Apparent elastic properties

Figs. **??**(a) and **??**(b) display the evolution of the in-plane components C_{1111}, resp., C_{2222}, expressed in the image frame, for several volumes taken from the same paper (isotropic model paper pressed at 0.51 MPa dried under constraint). The fluctuations of the mean values of these coefficients decrease for $l > 300$ μm that corresponds to about 8 in-plane covariance

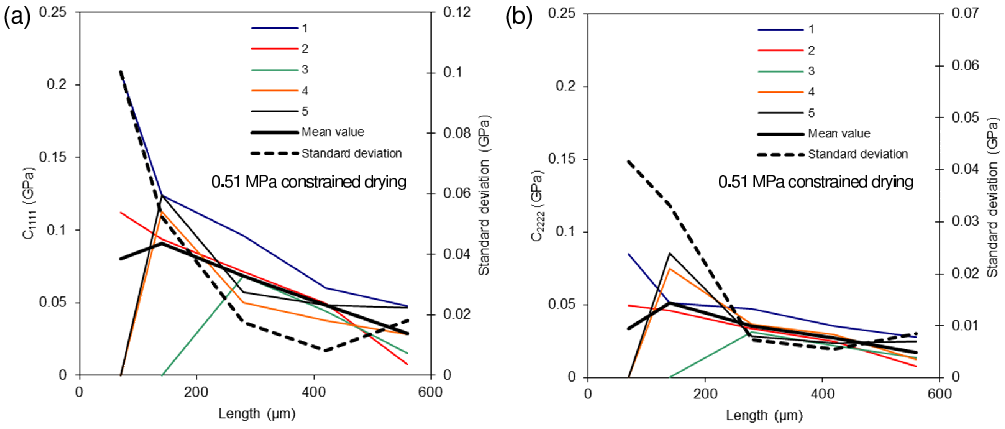


Figure 10.7: (a) C_{1111} and (b) C_{2222} of several volumes of the same specimen as a function of the side volume length, and corresponding mean value and standard deviation of the 5 curves (case of an isotropic model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint).

lengths l_{cxy}. Furthermore the standard deviation reaches low values, i.e. less than 0.02 GPa, for $l > 300$ μm. Then this length can be considered as a minimum length over which it becomes possible to estimate the mean apparent values of the stiffness components. Nonetheless, these values do not necessarily coincide with the effective mean values of these coefficient needed to estimate the size of statistical REVs (see below) as they still depend on the volume size and tested elementary volumes may not be sufficient enough to catch the mean value property.

Estimation of the in plane size of the elasticity statistics REV

The statistical approach used in the previous chapter to estimate the size V of a "statistical" REV for the fibre volume fraction is applied again for the elastic tensor components C_{ijkl}. Following this approach, the volume V for the statistical REV can be estimated as follows:

$$V(n,\varepsilon_{rela}) = \left(\frac{4K}{n < C_{ijkl} >^2 \varepsilon_{rela}^2} \right)^{\frac{1}{\gamma}}, \tag{10.17}$$

where $< C_{ijkl} >$ designates the effective mean value of the elastic stiffness component C_{ijkl}. It is difficult to estimate the $< C_{ijkl} >$ as they do not coincide with the mean apparent components due to the dependence on the size of volumes in the range of considered dimensions. Such possible bias in the method was already underlined by Kanit et al. [5]. To circumvent this difficulty, these authors chose to only consider unbiased mean values, i.e. obtained from sufficiently large volumes so that the mean apparent elastic properties were not dependent on the volume size. In the present case, the effective mean values of the components C_{ijkl}

were chosen as corresponding to the values delivered by the largest available volumes (side dimensions of 700 μm × 700 μm and thickness equal to 14 μm) for which it was possible to run the calculations. Note that these volumes had dimensions larger than 300 μm × 300 μm for which the mean values of elastic components exhibit pronounced variations and are clearly biased.
Following the approach described in the previous chapter, the exponent γ was obtained from the evolution of the variances of the stiffness components C_{ijkl} with respect to the volume size V assuming the following empirical law:

$$D^2_{C_{ijkl}}(V) = KV^{-\gamma}. \tag{10.18}$$

Fig. 10.8 depicts the evolution of the variance of the C_{1111} component for specimens taken from the paper dried under constraint shown in Fig. 10.7). The best fit was obtained for $\gamma = 1$ and $K = 650$ GPa^2 μm$^{3\gamma}$. Note that the value of γ and K can vary depending on the stiffness component, *e.g.* $\gamma = 0.7$ and $K = 2.5$ for the C_{3333} component.
Then considering a number of realisations $n = 3$ to obtain an estimate of the C_{1111} component with a relative error $\varepsilon_{rela} = 10\%$, the in plane dimensions l of the volumes must be equal to approx. 2000 μm. For the other stiffness components, this size is slightly lower but of the same order. It is interesting to see that this length is of the same order of magnitude as the average length of fibres forming the model papers and confirms the crucial role of fibres for the load transfer over large distances (or long ranges) throughout the network structure. Unfortunately, it is also largely higher than the maximum side dimensions of the volumes it was possible to test on 16 Gbytes or 32 Gbytes memory machines. So it shows a significant limitation of the numerical continuum approaches to predict the effective behaviour of fibrous networks.

10.3.3 Estimation of in plane Young's moduli E_1 and E_2

In order to compare the numerical predictions with the experimentally measured elastic properties of model papers, the in plane Young's moduli E_1 and E_2 along the (in plane) principal mechanical directions of the volumes were estimated using the stiffness components C_{ijkl} considering simple tensile test loading cases:

$$E_1 = C_{1111} - C_{1122}A + \frac{C_{1133}C_{2233}A - C^2_{1133}}{C_{3333}}, \tag{10.19}$$

with

$$A = \frac{C_{1122}C_{3333} - C_{1133}C_{2233}}{C_{2222}C_{3333} - C^2_{2233}} \tag{10.20}$$

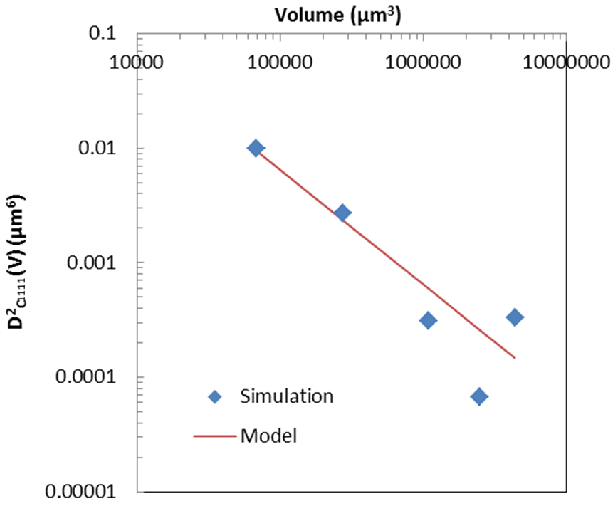


Figure 10.8: Variance $D^2_{C_{1111}}(V)$ of the elastic stiffness tensor component C_{1111} as a function of the volume V used to perform the numerical calculations (case of an isotropic model paper pressed at 0.51 MPa and dried under constraint).

and

$$E_2 = C_{2222} - C_{1122}B + \frac{C_{1133}C_{2233}B - C^2_{2233}}{C_{3333}}, \tag{10.21}$$

with

$$B = \frac{C_{1122}C_{3333} - C_{1133}C_{2233}}{C_{1111}C_{3333} - C^2_{1133}}. \tag{10.22}$$

Influence of density

Fig. 10.9(a) shows the evolution of the Young's modulus E_i ($i = 1$ or $i = 2$) obtained by numerical simulations using volumes having minimal dimensions of 400 μm × 400 μm × 14 μm. Volumes were extracted from images of model papers with in plane random fibre orientation or in plane preferential fibre orientation. No distinction regarding their drying conditions are made considering their previously observed weak influence on papers' properties. The limited dimensions of the volumes deliver predictions of the elastic coefficients that have a rather low precision. For a number of realizations $n = 1$, the relative error on the estimate of the mean effective value of C_{1111} reaches for instance approx. 90 % (!) considering the statistical law given in Eq. 10.3.2. However, from this graph, several comments can be made:

- Whatever the model papers there is a pronounced dependency of E_i with the density

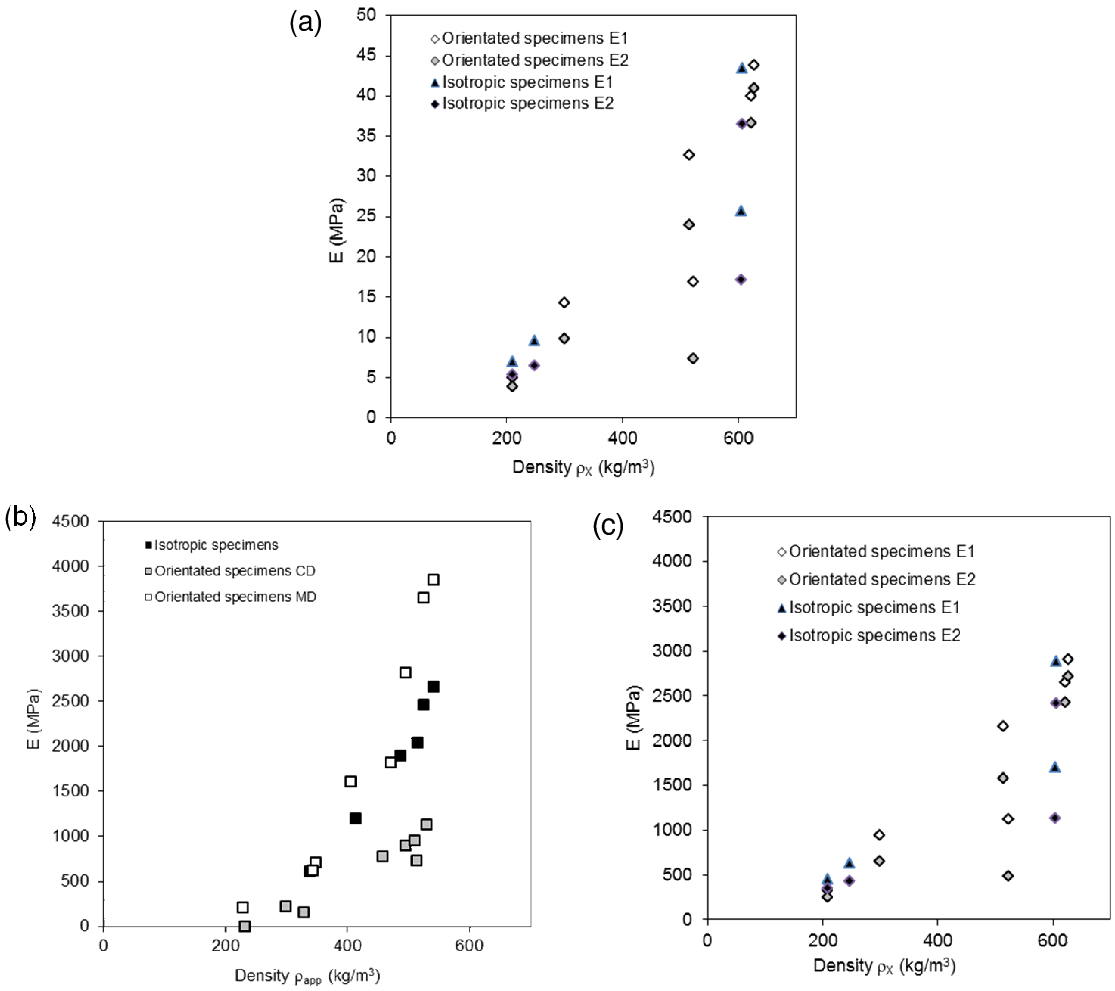


Figure 10.9: Evolution of the Young's modulus with the paper density: (a) numerical simulation values accounting for a Young's modulus of the fibrous phase E_f = 1 GPa, (b) experimental values and (c) numerical simulation values accounting for a a Young's modulus of the fibrous phase E_f = 70 GPa

ρ_X of volumes can be observed. This reflects the observed experimentally behaviour for the Young's moduli with the paper density as depicted in Fig. 10.9(b): see below.

- At a given density, there is no obvious distinction between the volumes extracted from papers with in plane random or preferential fibre orientation. Values of E_1 and E_2 can be largely different even for volumes extracted from papers with in plane random fibre orientation. Such behaviour might have been anticipated from the evolution of the stiffness tensor components shown in Figs. 10.6(a) and 10.6(b) with the volume size. As already underlined, it might be due to the relatively limited size of the volumes used for numerical simulation.

Comparison with experiments

In Fig. 10.9(b), the evolution of the experimental values of the Young's moduli of model papers are given as a function of their apparent density. Such data were measured by performing simple tensile tests using a specially designed apparatus (Lorentzen & Wettre No. 162, horizontal tensile tester) installed in an air conditioned room (Relative Humidity RH = 50%, Temperature T = 23°C). Specimens were paper strips of 100 mm in length and 15 mm in width. As previously noticed in chapters 6 and 7, a large increase of the in plane Young's moduli of papers with their apparent density is observed. At a given density, the Young's moduli of papers having an in plane fibre orientation are higher along the machine direction (MD) than parallel to the cross direction (CD) showing the orthotropic mechanical behaviour of these materials. Papers with a random planar fibre orientation have Young's moduli that are comprised between the MD and CD moduli of in plane anisotropic papers. Note also the extremely low values of Young's moduli for papers having an apparent density close to 200 kg m^{-3}. This low value can be seen as a threshold below which the number of fibre-to-fibre bonds is to low and the number of inactive fibre segments, i.e. the number of fibre segments non transmitting loading, is high in the fibrous networks.
In Fig. 10.9(c), the numerical values of the in plane Young's moduli shown in Fig. 10.9(a) were multiplied by a factor of 70 to provide the best fit with the experimentally determined macroscopic data given in Fig. 10.9(b). This multiplicative factor is quite high. Indeed this should mean that the Young's modulus of the fibre phase should be about 70 GPa, which is obviously high compared with the average longitudinal Young's modulus of pulp fibres. Young's moduli about 20 GPa to 30 GPa would correspond to reasonable values. Then the predicted elastic properties are largely too compliant compared to the real material properties. There are several hypotheses that might explain such large difference. The following points highlights some of them:

- The volumes used for the numerical simulation are obtained from real fibrous network, thus without periodicity. Then the surface fraction of the fibre phase on opposite faces

of a volume V can be different, which can result imposing periodic boundary conditions on artificially reduced portions of the surface of the fibre phase. This might result in a reduced stiffness of the fibre phase.

- The in plane size of the volumes V used for calculations are limited compared to the average length $L_{moy} = 2$ mm of fibres. Thus the simulation cannot represent the long range interaction effects that might appear due to the length of fibres and the large number of contacts and bonds they encounter with their neighbouring fibres. This might also result in a reduced stiffness of the fibre phase.

10.4 Conclusion

The size of the REVs for the elastic properties of model papers was investigated. The method adopted relied on the estimation of the components of the linear elastic stiffness tensor by performing a large number of calculations on volumes having various sizes that were extracted from X-ray microtomography images of model papers. The calculations were performed using a commercial finite volume software that enforces periodic boundary conditions to the volumes.
It was shown that REVs have a minimum thickness roughly equal to $2l_{cz}$ with l_{cz} the covariance length through the thickness of model papers for the in-plane stiffness tensor components.
The determination of the in plane size of the REVs was made difficult by the relatively limited size of volumes that could be used due to the limited memory of the computing systems. This induced that no clear stabilisation of the mean values of the stiffness coefficients could be observed with the increase of the volume size. This was problematic as this did not allow us to extract the mean effective values of the components C_{ijkl} needed to determine the size of "statistical" REVs. However, the fluctuations of the computed components decreased largely for side volume lengths above ≈ 300 μm. This length could be seen as the minimum length below which one could not estimate apparent elastic stiffness components that would be reasonably close to the effective sought components. It was then considered that the largest possible volumes (in plane side dimensions of 700 μm $\times$ 700 μm) could be used to reasonably estimate the needed mean effective components to determine the size of statistical REVs for the elastic properties. For a reasonable number $n = 3$ of realisations and a relative error $\varepsilon_{rela} = 10\%$ the needed size of the REVs was shown to be about 2000 μm $\times$ 2000 μm for the tested model papers, i.e. about the mean fibre length they contain.
The limited size of volumes had another drawbacks as no transverse isotropic behaviour was clearly revealed for volumes extracted from papers with in plane random fibre orientation. The elastic behaviour was, however, clearly orthotropic for all tested volumes as soon their size was sufficient.

Besides, increasing the density of volumes was shown to result in an, expected, increase of the in plane Young's moduli of papers. The comparison of the predicted elastic properties of model papers with those experimentally measured was less conclusive. The predicted stiffness of model papers was indeed too low compared to the experiments. This effect might either be due to the enforced periodic conditions used to run the simulation or to the limited size of available volumes. In this latter case, the "long range" effect of fibres for the load transfer within the fibrous networks could not be properly reproduced by the simulation.

Bibliography

[1] J.-L. Auriault, Heterogeneous medium. is an equivalent macroscopic description possible? *Int. J. Eng. Sci.*, 29(7):785–795, 1991.

[2] A. Bensoussan, J.-L. Lions, and G. Papanicolaou, *Asymptotic Analysis for Periodic Structures*, North Holland, Amsterdam, 1978.

[3] M. Decain, Contribution à l'étude des relations entre microstructures et propriétés thermiques et d'écoulement des matériaux fibreux cellulosiques, Thèse de l'université de Grenoble-Alpes (2009).

[4] J. Dirrenberger, Effective properties of architectured materials, PhD Thesis ParisTech (2012).

[5] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury , D. Jeulin, Determination of the size of the representative element for random composites: statistical and numerical approach, Int. J. Solids Struct., 40, 3647–3679 (2003).

[6] E. Sanchez-Palencia, *Non-Homogeneous Media and Vibration Theory*, Lecture Notes in Physics. Springer-Verlag, Berlin, Germany, 1980.

Partie V

Modélisation du comportement mécanique des réseaux fibreux

Chapitre 11

A simple discrete analysis to model the elasticity of paper

11.1 Introduction

In the previous chapter, estimates of the elastic properties of papers were obtained from Finite Volume simulations achieved on real imaged Elementary Volumes (EVs) paper microstructures. Interesting preliminary trends could be drawn from this analysis. However, representative results, *i.e.* obtained on Representative Elementary Volumes (REVs), could hardly be obtained because of the too big sizes of boundary values problems to be solved within the considered EVs.

In the two following chapters, to circumvent this numerical difficulty, we propose to simplifiy (and thus to reduce the size of) the mechanical local problem, by adopting a discrete viewpoint which consists in assuming that paper fibrous microstructures are networks of rigid (this chapter) or elastic (next chapter) beams connected by deformable fibre-fibre bonds.

In this chapter, two macroscale elastic models, *i.e.* a numerical model and an analytical one, are built from the fine 3D microstructures analysed in the previous chapters (6 and 7). Among the interesting results extracted from these studies, (i) the mean distance bewteen two adjacent bonds on a fibre was found to be of the ordrer of magnitude of the mean fibre width and (ii) the mean bonding degree ratios took very weak values. From such experimental evidences, a first, reasonable and very simple set of microstructural and micromechanical assumptions was thus here stated to describe the microscale elastic deformation of the studied papers: only deformation micromechanisms arising inside fibre bonds and their neighbouring contribute to the overall elastic deformation of papers, fibre parts far from bonds being considered as rigid beams (the last assumption will be relaxed in the next chapter). Such a

local and discrete description was then upscaled by using the method of homogenisation for periodic discrete structures. This method propose a rigorous framework to deduce the constitutive properties and the balance equations of the paper's equivalent continuum media. It also provides well-posed localisation problems to be solved on Representative Elementary Volumes of papers to estimate their macroscale properties, as in the previous chapter. These problems were here solved numerically (first macroscale model) using a discrete element code initially developed to study the rheology of concentrated fibre suspensions. From these numerical results, that clearly highlight the influence of microstructure parameters (fibre geometry, content and orientation) on the elastic properties of papers, a second macroscale model was then built analytically, by constraining local kinematical fields of fibres. From the knowledge of the fibre geometry, content and orientation, these two models provide nice fits of experimental data (obtained with the processed model papers) with only one constitutive parameter to be determined, namely the bond shear stiffness.

11.2 Problem statement and idealisation

11.2.1 Microstructural assumptions

In chapters 6 and 7, an exhaustive analysis of the fibrous microstructures of model papers was carried out from 3D micrographs. The main results extracted from these studies are briefly recalled herafter. They consitute the basis of the microstructural assumptions that will be stated in the following:

- Papers under consideration are sheets of thickness $h \approx 100-1000$ μm and characteristic in-plane length $L \approx 0.1-10$ m, within which cellulosic wood fibres are homogeneously distributed .
- The studied cellulosic fibres are more or less straight. Their mean lenght $l \approx 2$ mm, mean width $d_{max} \approx 30$ μm and mean thickness $d_{min} \approx 6$ μm are such that

$$d_{min} \ll d_{max} \ll l \ll L, \tag{11.1}$$

  with the following good scale separation condition:

$$\epsilon = \frac{l}{L} \ll 1. \tag{11.2}$$

- Due to the paper processing conditions, cellulosic fibres within their fibrous network are wealkly twisted and such that their centreline together with the principal direction of their cross sections (of mean dimension d_{max}) are quasi parallel to the midplane $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ of the sheets.

- Within this plane, the fibre centrelines can exhibit random or preferred fibre orientation, depending on the processing contitions.

- The mean fibre coordination number $\bar{z}$, *i.e.* the number of fibre-fibre contacts per fibre of the considered papers is rather well estimated by the statistical description proposed by the tube model [7], [22], [24], [16], [9], [18] written by considering straight, flat with constant elliptical cross section fibres with in-plane fibre orientation. Thus, if the fibre content ϕ and the fibre orientation distribution function φ are known, a proper estimate of $\bar{z}$ is [9]:

$$\bar{z} = 4\phi\left(\frac{2}{\pi}\frac{l}{d_{max}}\varphi_1 + \varphi_2 + 1\right), \tag{11.3}$$

where de orientation functions φ_i are completely determined from the knowledge of φ (for example, $\varphi_1 = \varphi_2 = 2/\pi$ for planar random fibre orientation [24]). These functions can be estimated when the orientations of N fibres i of unit tangent vector $\boldsymbol{p}_i$ within a REV are known :

$$\varphi_1 = \frac{1}{N^2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}||\boldsymbol{p}_i \times \boldsymbol{p}_j||, \tag{11.4}$$

$$\varphi_2 = \frac{1}{N^2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}|\boldsymbol{p}_i \cdot \boldsymbol{p}_j|, \tag{11.5}$$

This expression is valid only in case of flat fibres with planar fibre orientation [9]. In chapter 7, we have shown that the considered paper fibres were not fully flat and exhibited some twist around their centrelines. To account for such a feature in a simple but relevant way, the minor axe d_{min} of the elliptical cross section of the tube model control volume, which represents the thickness of paper fibres when they are untwisted, was replaced by αd_{min} where $\alpha \geq 1$.

$$\bar{z} = 4\alpha\phi\left(\frac{2}{\pi}\frac{l}{d_{max}}\varphi_1 + \varphi_2 + 1\right), \tag{11.6}$$

Results shown in chapter 7 proved that a value close to 2 could capture rather well experimental trends.

- For the investigated papers, the fiber content ϕ of which ranged between 0.1 and 0.45, the portion of fibres in between contact zones was lower than 50 μm, *i.e.* very close to the fibre width d_{max}. In other words, this proves that the considered fibrous networks are highly connected (more than 20 fibre bonds per fibre) and that portions of fibres in between bonds are not slender beams, even if paper fibres can be considered as slender beams.

- The mean bonding area S_c between contacting fibres is very weak. Indeed, it was found that the mean bounding degree ratio $\bar{b}$, *i.e.* the typical width d_c of contact surfaces over the mean width of fibres d_{max}, was a function of the fibre content ϕ with a mean value close to 0.35: assuming reasonably that $S_c \propto d_c^2$, this yields to $S_c \propto \bar{b}^2 d_{max}^2 \approx 0.125 d_{max}^2$.

Consequently, from the experimental evidences stated above, the discrete models presented hereafter suppose that paper sheets are thin discrete structures within which cellulosic fibres can be considered as straight and slender beams with flat and constant elliptical cross section the principal direction of which is parallel to the midplane of the sheets, with planar fibre orientation, a high fibre connectivity rather well estimated by the tube model and with very small contact surfaces the normal unit vectors of which are perpendicular to the midplane of the paper sheets.

11.2.2 Micromechanical assumptions

To study the mechanics of the fibrous networks under consideration, it is then assumed that cellulosic fibres are slender rigid beams linked with elastic bonds. Such an *a priori* and apparently strong idealisation is supported by the experimental observations summarised in the previous subsection. Indeed, the distance between fibre bonds is similar as the fibre width and the bonding degree ratio is very small: this conducts us to neglect, as a first approximation, the fibre deformation far from bonds compared with deformation mechanisms arising inside and in the close neighbouring of bonds.

Under such circumstances, when the considered fibrous networks are subjected to a macroscopic in-plane mechanical loading[1], *e.g.* by a macroscopic in plane displacement gradient $\nabla\tilde{\boldsymbol{U}}$[2], the in-plane infinitesimal displacement $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}$ of a point M_i of a fibre i, of position $\tilde{\boldsymbol{x}}_i$, located at a curvilinear abscissa s_i^M from its centre of mass G_i (of position $\tilde{\boldsymbol{x}}_{G_i}$) along the fibre centreline of tangent unit vector $\boldsymbol{p}_i$ ($\boldsymbol{G}_i\boldsymbol{M}_i = s_i\boldsymbol{p}_i$) can be written as:

$$\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i(\tilde{\boldsymbol{x}}_i) = \delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i + s_i^M \delta\theta_i \boldsymbol{e}_3 \times \boldsymbol{p}_i, \tag{11.7}$$

where $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i = \delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i(\tilde{\boldsymbol{x}}_{G_i})$ and $\delta\theta_i$ are the infinitesimal in-plane displacement of G_i and rotation angle of the fibre i around $\boldsymbol{e}_3$, respectively.

The local infinitesimal displacement and rotation of the fibres induce the deformation of the fibre bond zones. For the considered in-plane macroscopic loadings, it is assumed that the deformation of the bond b between two contacting fibres i and j is accompained by in-plane

[1] Only these situations will be investigated in this work.

[2] In the following, vectors $\tilde{\boldsymbol{a}}$ or tensors $\tilde{\boldsymbol{A}}$ have zero valued out-of-plane components, *i.e* their in-plane components being respectively the projection of $\boldsymbol{a}$ and $\boldsymbol{A}$ in the sheet midplane $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$.

shear reaction force $\tilde{\boldsymbol{f}}_b$ and an out-of-plane shear reaction moment $M_b\boldsymbol{e}_3$. In practice, fibre bonds and their close neighbouring exhibit very complex geometries and mechanical behaviour. Here, very simple phenomenological expressions of $\tilde{\boldsymbol{f}}_b$ and M_b are proposed and assumed to be relevant enough to model the overall mechanical behaviour of the bond b:

$$\tilde{\boldsymbol{f}}_b = k\frac{\bar{b}^2 d_{max}^2}{|\sin\theta_b|}\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b, \tag{11.8}$$

$$M_b = k\frac{\pi\bar{b}^2 d_{max}^4}{4|\sin\theta_b|^2}\Delta\theta_b, \tag{11.9}$$

Thus, $\tilde{\boldsymbol{f}}_b$ and M_b both depend on the contact area $S_b \approx \bar{b}^2 d_{max}^2/|\sin\theta_b|$ and on the relative angle θ_b between the considered contacting fibres i and j. Besides, they involve an equivalent bond shear stiffness per unit of surface k to be determined. Lastly, $\tilde{\boldsymbol{f}}_b$ and M_b are respectively linear functions of the infinitesimal relative displacement $\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b$ and rotation $\Delta\theta_b$ of fibre i and j at contact b:

$$\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b = \delta\tilde{\boldsymbol{u}}_j - \delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i + \boldsymbol{e}_3 \times (s_j^b\delta\theta_j\boldsymbol{p}_j - s_i^b\delta\theta_i\boldsymbol{p}_i) \tag{11.10}$$

$$\Delta\theta_b = \delta\theta_j - \delta\theta_i \tag{11.11}$$

Hence, neglecting acceleration and external volume forces and moments, and introducing $\mathscr{B}_i$ the set of the bonds of fibre i, the momentum balance governing the in-plane motion of a given fibre i can be written as

$$\begin{cases} \displaystyle\sum_{b\in\mathscr{B}_i} \tilde{\boldsymbol{f}}_b = \tilde{\boldsymbol{0}} \\ \displaystyle\sum_{b\in\mathscr{B}_i} M_b\boldsymbol{e}_3 = \sum_{b\in\mathscr{B}_i} s_i^b\tilde{\boldsymbol{f}}_b \times \tilde{\boldsymbol{p}}_i \end{cases}. \tag{11.12}$$

It is interesting to note that such momentum balance equations lead to a two-dimensional mechanical problem, as contact forces (resp. moments) are contained in $(\boldsymbol{e}_1, \boldsymbol{e}_2)$ (resp. parallel to $\boldsymbol{e}_3$ and only functions of $\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b$ (resp. $\Delta\theta_b$). Solving these equations for the set $\mathscr{N}$ of the N fibres i contained in a REV represents the equilibrium of the REV.

It is also worth noting that the last set of equations can be recasted in a dimensionless form

$$\begin{cases} \displaystyle\sum_{b\in\mathscr{B}_i} \tilde{\boldsymbol{f}}_b^* = \tilde{\boldsymbol{0}} \\ \mathscr{M}\displaystyle\sum_{b\in\mathscr{B}_i} M_b^*\boldsymbol{e}_3 = \sum_{b\in\mathscr{B}_i} s_i^{b*}\tilde{\boldsymbol{f}}_b^* \times \tilde{\boldsymbol{p}}_i \end{cases}, \tag{11.13}$$

by introducing the following set of dimensionless variables (with a "*") :

$$\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b^* = \frac{\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b}{\Delta\tilde{u}_c}, \quad \Delta\theta_b^* = \frac{\Delta\theta_b}{\Delta\theta_c} \tag{11.14}$$

$$s_i^* = \frac{s_i}{l}, \qquad \frac{1}{|\sin\theta_b^*|} = \frac{|\sin\theta_c|}{|\sin\theta_b|} \tag{11.15}$$

$$\tilde{\boldsymbol{f}}_b^* = -\frac{1}{|\sin\theta_b^*|}\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b^*, \quad M_b^* = -\frac{1}{|\sin\theta_b^*|^2}\Delta\theta_b^*, \tag{11.16}$$

where microscale geometrical and mechanical characterisitc values have been introduced (with a subscript "$_c$") and where the dimensionless number

$$\mathscr{M} = \frac{\pi d_{max}^2 \Delta\theta_c}{4|\sin\theta_c|^2 l \Delta\tilde{u}_c}, \tag{11.17}$$

gauges the magnitude of the bond reaction moments with respect to moments induced by reaction forces. As emphasised in the next subsection, this dimensionless number plays a key role on the form and the properties of the equivalent continua of the studied papers.

Lastly, please notice that there is a very strong analogy between the as-proposed micromechanics and that proposed previously by Le Corre et al. [15, 16] to model the in-plane rheology of highly concentrated fibre bundle suspensions with planar bundle orientation and Newtonian bundle-bundle interactions, by replacing the present infinitesimal displacement and rotation fields of the fibres by the translational and rotational velocity fields of the bundles in the suspensions, respectively.

11.3 Theoretical Upscaling

To upscale a similar micromechanics, Le Corre et al. used the homogenisation method for periodic discrete structures [15]. This theoretical framework is an extension to discrete structures of the homogenisation method of multiple scale expansions for periodic structures [3, 23, 2]. It has been initially developed for the modeling of mechanical properties of trusses, honeycomb structures or buildings in the scope of elasticity [3], [25], [4], [1]. The objective of the following sections is to give a brief summary of the derivation of the macrsoscale mechanics of the papers by this upscaling technique. For details related to the theoretical aspects of the analysis, the reader is referred to [15], but also to the next chapter where the present work has been extented to the case of flexible fibres.

Thus, papers are idealised as (quasi-)periodic assemblies of identical REVs, each REV containing the N fibres i connected by the set $\mathscr{B}$ of the B fibre-fibre bonds b (see Fig. 11.1).

Combined with the scale separation condition Eq.(11.2), the periodicity condition enables one to write the infinitesimal displacement $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i$ and rotation $\delta\theta_i$ fields of a fibre i as "discrete" asymptotic expansions in powers of the scale separation parameter ϵ such as [3, 25, 15]

$$\begin{cases} \delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i(\tilde{\boldsymbol{x}}) = \delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(0)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) + \epsilon\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(1)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) + \epsilon^2\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(2)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) + ... \\ \delta\theta_i(\tilde{\boldsymbol{x}}) = \delta\theta_i^{(0)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) + \epsilon\delta\theta_i^{(1)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) + \epsilon^2\delta\theta_i^{(2)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) + ... \end{cases} . \tag{11.18}$$

In these equations, the fields $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(n)}$ and $\delta\theta_i^{(0)}$ are continuous functions of the space variable $\tilde{\boldsymbol{x}}$ and discrete periodic functions of the local fibre index i. Thus, as illustrated in Fig. 11.1, $\epsilon^n\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(n)}$ and $\epsilon^n\delta\theta_i^{(n)}$ respectively represent the n-order fluctuations of $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i$ and $\delta\theta_i$, $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(n)}$ and $\delta\theta_i^{(n)}$ being of the same order of magnitude ($\forall n$).

The method then consists in introducing these expansions inside the momentum balance equations Eq.(11.13) with proper estimations of the order of magnitude of $\mathscr{M}$ with respect to the scale separation parameter ϵ. Therewith, the use of a virtual power formulation is made in order to determine the macroscopic behavior of the considered fiber networks [25]. By applying this procedure, the following important results can be shown:

- The infinitesimal displacement fields $\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(0)}$ do not depend on the fibre i, *i.e.*

$$\forall i \in \mathscr{N}, \quad \tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(0)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) = \tilde{\boldsymbol{u}}^{(0)}(\tilde{\boldsymbol{x}}) = \tilde{\boldsymbol{U}}(\tilde{\boldsymbol{x}}) \tag{11.19}$$

  Thus, at the first order, the equivalent continua are one-phase media with a macroscale displacement field $\tilde{\boldsymbol{U}}(\tilde{\boldsymbol{x}})$.

- Depending on the order of magnitude of $\mathscr{M}$ three different macroscale media are found:
  - When $\mathscr{M} = \mathscr{O}(1)$, *i.e.* when the magnitudes of the bond reaction moments and those of the moments induced by reaction forces are of the same order, the equivalent macroscale continuum is a Cosserat medium.
  - When $\mathscr{M} = \mathscr{O}(\epsilon)$ or $\mathscr{M} = \mathscr{O}(\epsilon^2)$, *i.e.* when the magnitudes of the bond reaction moments one or two orders of magnitude (in power of ϵ) lower than the moments induced by reaction forces, the equivalent macroscale continuum is a standard Cauchy medium with a symmetric Cauchy stress tensor $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}$. In the following, we will focus on the last situation which is supposed to occur when the fibre orientation goes from random to moderately aligned in the sheet midplane and when the scale separation is good [16].

- When $\mathscr{M} = \mathscr{O}(\epsilon^2)$, the macroscale stress tensor $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}$ takes the following discrete form :

$$\tilde{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{V}\sum_{b\in\mathscr{B}} \tilde{\boldsymbol{\xi}}_b \otimes \boldsymbol{f}_b^{(0)}, \tag{11.20}$$

where V is the volume of the considered REV, where

$$\tilde{\boldsymbol{\xi}}_b = \boldsymbol{G}_i\boldsymbol{G}_j = s_i^b\tilde{\boldsymbol{p}}_i - s_j^b\tilde{\boldsymbol{p}}_j, \tag{11.21}$$

i and j being the two fibres connected at bond b and where

$$\boldsymbol{f}_b^{(0)} = k\frac{\bar{b}^2 d_{max}^2}{|\sin\theta_b|}\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b^{(1)}, \tag{11.22}$$

with

$$\begin{array}{rcl}\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b^{(1)} & = & \epsilon\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_j^{(1)} - \epsilon\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(1)} \\ & + & \tilde{\boldsymbol{\nabla}}\tilde{\boldsymbol{U}}\cdot\tilde{\boldsymbol{\xi}}_b \\ & + & \boldsymbol{e}_3\times(s_j\delta\theta_j^{(0)}\tilde{\boldsymbol{p}}_j - s_i\delta\theta_i^{(0)}\tilde{\boldsymbol{p}}_i)\end{array}, \tag{11.23}$$

By introducing $Z = B/V = n\bar{z}/2$ the number of bonds per unit of volume and n the number of fibres by unit of volume N/V, $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}$ can finally be expressed as:

$$\tilde{\boldsymbol{\sigma}} = k\frac{n\bar{z}}{2}\bar{b}^2 d_{max}^2\frac{1}{B}\sum_{b\in\mathscr{B}}\frac{1}{|\sin\theta_b|}\tilde{\boldsymbol{\xi}}_b\otimes\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b^{(1)}, \tag{11.24}$$

highlighting explicitly the role of some microstructure parameters on the macroscale stress tensor.

- The unknown fields $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(1)}$ and $\delta\theta_i^{(0)}$ required to estimate $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}$ are solutions of the following self-equilibrium of the REV:

$$\forall\, i\in\mathscr{N},\quad \left\{\begin{array}{l}\displaystyle\sum_{b\in\mathscr{B}_i}\tilde{\boldsymbol{f}}_b^{(0)} = \tilde{\boldsymbol{0}} \\ \displaystyle\sum_{b\in\mathscr{B}_i}M_b^{(0)}\boldsymbol{e}_3 = \sum_{b\in\mathscr{B}_i}s_i^b\tilde{\boldsymbol{f}}_b^{(0)}\times\tilde{\boldsymbol{p}}_i\end{array}\right., \tag{11.25}$$

where

$$M_b^{(0)} = k\frac{\pi\bar{b}^2 d_{max}^4}{4|\sin\theta_b|^2}(\delta\theta_j^{(0)} - \delta\theta_i^{(0)}). \tag{11.26}$$

- From such a well-posed linear self-equilibrium, it can be shown that $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i^{(1)}$ and $\delta\theta_i^{(0)}$ are linear functions of the macroscale displacement gradient $\tilde{\boldsymbol{\nabla}}\tilde{\boldsymbol{U}}$. Therewidth, it can be proved that $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}$ is a linear function of the macroscale deformation $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}(\tilde{\boldsymbol{\nabla}}\tilde{\boldsymbol{U}})$:

$$\tilde{\boldsymbol{\sigma}} = \tilde{\mathbb{C}} : \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}} \tag{11.27}$$

where the elastic stiffness tensor $\tilde{\mathbb{C}}$ is symmetric, definite and positive.

11.4 Estimations of $\tilde{\mathbb{C}}$

We present hereafter two methods to estimate the elastic stiffness tensor $\tilde{\mathbb{C}}$, namely a numerical one based on discrete element simulations and an analytical one that assumes predefined kinematical fields for the fibres.

11.4.1 Model 1 : Discrete Element Simulations

The components of $\tilde{\mathbb{C}}$ can be precisely calculated (i) by subjecting a considered REV to three independent macrocsale strain $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}$, *e.g*

$$\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^I = \boldsymbol{e}_1 \otimes \boldsymbol{e}_1, \;\; \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^{II} = \boldsymbol{e}_2 \otimes \boldsymbol{e}_2, \;\; \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^{III} = (\boldsymbol{e}_1 \otimes \boldsymbol{e}_2 + \boldsymbol{e}_2 \otimes \boldsymbol{e}_1)/2, \tag{11.28}$$

(ii) by solving the self equilibrium of the REV for these three strain tensors, (iii) by building the resulting macroscopic stress tensor Eq.(11.20) and (iv) by its identification with Eq.(11.27). In this work, step (ii) was achieved by using the disrete element code initially developped in [16, 8] to study the rheology of concentrated fibre bundle suspensions.

To generate realistic numerical REVs, *i.e.* to mimic the imaged fibrous microstructures of the model papers (see the previous chapters 6 and 7), a simple deterministic technique inspired from the statistical tube model Eq.(11.2.1) was used. Briefly, N straight fibres i of lenght l with elliptical cross section of area $\pi d_{max} d_{min}/4$ the orientation vectors $\boldsymbol{p}_i$ of which were parallel to the paper sheet midplanes were generated inside 3D REVs of volume $V = d \times d \times h$ (see Fig. 11.2, d and h being the in-plane length and the thickness of the REVs, respectively). The centre of mass G_i of each fibre was set to a random position in the REVs. The in-plane dimensions d of the REVs were chosen larger than the fibre length l to avoid the possibility to generate a continuous fibre. Practically, d was set to a $1.5l$ and h was close to 10 d_{min}. To detect fibre bonds, a control volume V_i was assigned to each fibre i: every fibre j the centreline of which intersects V_i was added to the set of connectivity $\mathscr{B}_i$. V_i was chosen as a rectangular box with dimensions $l \times d_{max} \times 2d_{min}$.

REVs with various fibre contents $\phi = N\pi d_{max} d_{max} l/4V$ ranging from 0.05 to 0.5 were thus generated, with various in-plane overall fibre orientations by using different Gaussian-based fibre orientation distributions, from planar random to higlhy orientated along the $\boldsymbol{e}_1$ direction. In the following, a compact measure was used to distinguish networks with different fibre orientations, namely the second order fibre orientation tensor $\tilde{\boldsymbol{A}}$ [1]:

$$\tilde{\boldsymbol{A}} = \frac{1}{N} \sum_{i \in \mathscr{N}} \tilde{\boldsymbol{p}}_i \otimes \tilde{\boldsymbol{p}}_i, \tag{11.29}$$

Unless otherwise specified, l, d_{max}, d_{min} were set to the mean values measured experimen-

tally, *i.e.* to 2000, 30 and 6 μm. As underlined in Fig. 11.3, the chosen generation procedure allows pretty good fits of the orientation distribution functions measured experimentally on the model papers. As emphasised from Fig. 11.4, the computed mean coordination number $\bar{z}$ well follows the evolution predicted by the statistical tube model Eq.(11.2.1) ($\alpha = 2$). It is also worth noting that both predictions rather well fit the experimental measurements. Finally, it is important to notice that the bonds of the REV were ascribed a mean bonding degree ratio $\bar{b}$ that corresponds to that measured experimentally. As illustrated in Fig. 11.5, $\bar{b}$ is an increasing function of the fibre content ϕ. Such an evolution was fitted by the following affine function:

$$\bar{b} = \alpha(\phi - \phi_0), \tag{11.30}$$

where for the tested papers, $\alpha = 1.2$ and ϕ_0 was set to a value of 0.02, *i.e.* a value below which, according to the tube model, the number of bonds per fibre is below 2.

Therefrom, these REVs were used to compute the components of $\tilde{\mathbb{C}}$ by solving the linear system Eq.(11.25). This procedure was performed to analyse the mechanics of papers for various microstructure parameters, as shown in the next section.

11.4.2 Model 2 : Analytical Estimation

To build an analytical expression with relevant microstructural and micromechanical parameters, easily and fastly computable (compared to discrete element simulations), it is possible to make further assumptions both on the fibrous microcstructures and on the fibre kinematical fields. They are described here below:

1. Still by considering the geometry of the fibres and the fibrous architectures used for discrete simulations, it is supposed that $\bar{z}$ is correctly described by the tube model Eq.(11.2.1) (see Fig. 11.4).

2. The two terms inside the summation of Eq.(11.24) are assumed to be weakly correlated, so that $1/|\sin\theta_b|$ can be extracted from the summation and approximated by its mean value. In other words, this is equivalent to state that bond areas $S_b\bar{b}^2 d_{max}^2/|\sin\theta_b|$ can be approximated to their mean value $\bar{S}_b$:

$$S_b = \frac{\bar{b}^2 d_{max}^2}{|\sin\theta_b|} \approx \bar{S}_b \approx \frac{\bar{b}^2 d_{max}^2}{\varphi_1} \tag{11.31}$$

3. The infinitesimal displacement field $\delta\tilde{\boldsymbol{u}}_i$ of the fibre i is assumed to be an affine function of the macroscopic displacement gradient. Such a hypothesis leads to neglect the first right hand term in Eq.(11.23).

4. The infinitesimal varation $\delta\tilde{\boldsymbol{p}}_i$ of the orientation vector $\tilde{\boldsymbol{p}}_i$ of the fibre i is only a rotation, since the fibre is inextensible : it is assumed that it such a rotation follows that subjected by the macroscale transformation. This is expressed as:

$$\begin{aligned}\delta\tilde{\boldsymbol{p}}_i &= \boldsymbol{e}_3 \times \delta\theta_i^{(0)}\tilde{\boldsymbol{p}}_i \\ &= \tilde{\boldsymbol{\nabla}}\tilde{\boldsymbol{U}}\cdot\tilde{\boldsymbol{p}}_i - (\tilde{\boldsymbol{p}}_i\cdot\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}\cdot\tilde{\boldsymbol{p}}_i)\tilde{\boldsymbol{p}}_i \quad , \\ &= \tilde{\boldsymbol{\nabla}}\tilde{\boldsymbol{U}}\cdot\tilde{\boldsymbol{p}}_i - \tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i : \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}\end{aligned} \tag{11.32}$$

so that, by accounting for the two previous assumptions, one can write:

$$\Delta\tilde{\boldsymbol{u}}_b^{(1)} = (s_i^b\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i - s_j^b\tilde{\boldsymbol{p}}_j\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_j\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_j) : \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}} \ . \tag{11.33}$$

Some of the previous assumptions are rather strong and bring up the following comments:

- In most situations, the kinematical constraints 3 and 4 are not fulfilled. They should be exactly satisfied for some particular REVs, such as some ordered fibrous networks (for example square arrangements) and nearly satisfied as considered microstructures become more and more homogeneous. In other cases, they look like discrete forms of the homogeneous strain assumption commonly postulated to obtain Voigt estimates for continuous heterogenous materials. Thus, building a model based on such constraint should lead to overestimate the real macroscale properties.

- The effect induced by hypothesis 2 should be to slightly smooth microscale heterogeneities of the fibrous networks. Doing so, it is expected to reduce the overestimation of macroscale stress levels that are induced by the kinematical constraints 2 and 3.

Thus, the previous assumptions lead to rewrite the macroscale stress tensor Eq.(11.24) as :

$$\tilde{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{kn\bar{z}\bar{b}^2 d_{max}^2}{2\varphi_1}\left(\tilde{\mathbb{B}}_1 + \tilde{\mathbb{B}}_2\right) : \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}, \tag{11.34}$$

where

$$\begin{cases} \tilde{\mathbb{B}}_1 = \dfrac{1}{B}\displaystyle\sum_{i\in\mathcal{N}}\sum_{b\in\mathscr{B}_i} s_i^{b^2}\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i \\ \tilde{\mathbb{B}}_2 = -\dfrac{1}{B}\displaystyle\sum_{i\in\mathcal{N}}\sum_{b\in\mathscr{B}_i} s_i^b s_j^b\tilde{\boldsymbol{p}}_j\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i\otimes\tilde{\boldsymbol{p}}_i \end{cases} \tag{11.35}$$

By assuming that bonds are well distributed along a fibre (this hypothesis also conducts smooth local heterogeneities), one can get estimates of the following discrete sums [27]:

$$\begin{cases} \sum\limits_{b\in\mathscr{B}_i} s_i^{b\,2} = z_i \bar{s}_i^2 = z_i \dfrac{l^2}{12}\left(1-\dfrac{1}{z_i}\right) \\ \sum\limits_{b\in\mathscr{B}_i} s_i^b = 0 \end{cases} \tag{11.36}$$

where z_i is the coordination number of fibre i. By assuming that $z_i \approx \bar{z}$ so that

$$z_i \bar{s}_i^2 = \bar{z}\bar{s}^2 = \bar{z}\frac{l^2}{12}\left(1-\frac{1}{\bar{z}}\right), \tag{11.37}$$

and by assuming that s_i^b and $s_j^b \tilde{\boldsymbol{p}}_j$ are uncorrelated, the above expressions of $\tilde{\mathbb{B}}_1$ and $\tilde{\mathbb{B}}_2$ finally become

$$\begin{cases} \tilde{\mathbb{B}}_1 = \dfrac{l^2}{6}\left(1-\dfrac{1}{\bar{z}}\right)\tilde{\mathbb{A}} \\ \tilde{\mathbb{B}}_2 = \mathbb{O} \end{cases}, \tag{11.38}$$

where $\tilde{\mathbb{A}}$ is the fourth order fibre orientation tensor defined as [1]:

$$\tilde{\mathbb{A}} = \frac{1}{N}\sum_{i\in\mathscr{N}} \tilde{\boldsymbol{p}}_i \otimes \tilde{\boldsymbol{p}}_i \otimes \tilde{\boldsymbol{p}}_i \otimes \tilde{\boldsymbol{p}}_i, \tag{11.39}$$

Consequently, a simple and compact analytical estimate of the stiffness tensor $\tilde{\mathbb{C}}$ is:

$$\tilde{\mathbb{C}} = \frac{k l^2 n \bar{z} \bar{b}^2 d_{max}^2}{12\varphi_1}\left(1-\frac{1}{\bar{z}}\right)\tilde{\mathbb{A}}, \tag{11.40}$$

or, by accounting for $n = 4\phi/d_{max}d_{min}l$ and Eq.(11.2.1), and by introducting the fibre aspect ratios $r_1 = l/d_{max}$ and $r_2 = d_{max}/d_{min}$:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbb{C}} &= \frac{4\alpha k l \phi^2 \left(\frac{2}{\pi} r_1\varphi_1 + \varphi_2 + 1\right)\bar{b}^2 r_2}{3\pi\varphi_1}\ldots \\ &\times \left(1 - \frac{1}{4\phi\left(\frac{2}{\pi} r_1\varphi_1 + \varphi_2 + 1\right)}\right)\tilde{\mathbb{A}} \end{aligned}, \tag{11.41}$$

Hence, the above expression clearly emphasises the role of the fibre geometry (l, r_1, r_2), content (ϕ) and orientation $(\tilde{\mathbb{A}}, \varphi_1, \varphi_2)$ together with the role of the bond stiffness (k) and bonding degree ratio $(\bar{b})$ on the stiffness of paper.

Notice that for slender fibres such that $r_1 \ll 1 = \mathcal{O}(\varphi_1) = \mathcal{O}(\varphi_2)$, a more compact expression is obtained:

$$\tilde{\mathbb{C}} \approx \frac{8}{3\pi^2} \alpha k l \phi^2 \bar{b}^2 r_1 r_2 \left(1 - \frac{1}{\frac{8}{\pi}\phi r_1 \varphi_1}\right) \tilde{\mathbb{A}}, \tag{11.42}$$

When $\bar{z} \gg 1$, *i.e.* for highly connected fibrous networks (such as those characterised in this work), this expression can finally be simplified as :

$$\tilde{\mathbb{C}} \approx \frac{8}{3\pi^2} \alpha k l \phi^2 \bar{b}^2 r_1 r_2 \tilde{\mathbb{A}}, \tag{11.43}$$

Under such circumstances, the stifness tensor $\mathbb{C}$ should follow linear evolutions with the fibre length l, fibre aspect ratios r_i and with the fibre orientation $\mathbb{A}$. In the same time, by accounting for Eq.(11.30), $\mathbb{C}$ should increase as a polynomial function of degree 4 of the fibre content.

11.5 Results

11.5.1 In-plane orthotropy

By performing rheometry experiments with the discrete element code on fibre bundle suspensions with Newtonian bundle-bundle interactions, Le Corre [14] proved that REVs generated with Gaussian based fibre orientation distributions (see for example Fig. 11.3) exhibited in-plane orthotropy. Thus, by taking advantage of the strong analogy of the present problem with that treated in [14], it is concluded that the as-studied fibrous microstructures exhibits orthotropic elasticity. It was checked that the principal directions of such an anisotropy correspond to the principal orthogonal directions of the generated fibrous microstructures, *i.e.* $\boldsymbol{e}_1$ and $\boldsymbol{e}_2$. It was thus possible to extract, from the three elementary macroscale loadings the REVs were subjected, expressions of the longitudinal E_L (parallel to the mean in-plane orientation $\boldsymbol{e}_1$) and the transverse E_T Young's moduli (parallel to $\boldsymbol{e}_2$) of the papers, together with their in-plane shear modulus G_{LT} and their in-plane Poisson ratios ν_{LT} and ν_{TL}, assuming a in-plane stress state:

$$\begin{cases} \nu_{LT} &= \dfrac{\sigma^I_{22}}{\sigma^I_{11}} \\ \nu_{TL} &= \dfrac{\sigma^{II}_{11}}{\sigma^{II}_{22}} \\ E_L &= \sigma^I_{11}(1 - \nu_{LT}\nu_{TL}) \\ E_T &= \sigma^{II}_{22}(1 - \nu_{LT}\nu_{TL}) \\ G_{LT} &= \sigma^{III}_{12} \end{cases}, \tag{11.44}$$

From the above expressions the four independent components of the symmetric tensor $\tilde{\mathbb{C}}$ can also be given:

$$\begin{cases} C_{LLLL} &= \dfrac{E_L}{1-\nu_{LT}\nu_{TL}} \\ C_{TTTT} &= \dfrac{E_T}{1-\nu_{LT}\nu_{TL}} \\ C_{LLTT} &= \dfrac{\nu_{TL}E_L}{1-\nu_{LT}\nu_{TL}} \\ C_{LTLT} &= G_{LT} \end{cases} , \tag{11.45}$$

11.5.2 Numerical results

The graphs plotted in Figs. 11.6 and 11.7 give the evolutions of the numerically predicted elastic parameters $E_L, E_T, G_{LT}, \nu_{LT}, \nu_{TL}$ with the fibre content respectively for planar random fibre orientation (Fig. 11.3(a)) and for papers with a preferred fibre orientation corresponding to that plotted in Fig. 11.3(b). To obtain these results, ten REVs per investigated fibre content were generated following the procedure described previously. Besides, the bond shear stiffness k was set to 2200 N mm^{-3}. From these figures, the following comments can be formulated:

- For a given fibre content greater than 0.1, the figures shows that the scattering of the numerical results (marks) around the mean fitted values (lines) is rather weak. This observed scattering is mainly induced by the generation procedure: fibres had random positions in the REVs and the fibre orientation distributions also presented some disorder around the targeted Gaussian-based distribution functions (see Fig. 11.3).

- Papers with 2D planar random fibre orientation exhibit in-plane isotropy, *i.e.* $E = E_L = E_T$, $\nu = \nu_{LT} = \nu_{TL}$ and $G_{LT} = E_L/2(1+\nu_{LT})$. It is interesting to notice that the associated Poisson ratio ν is more or less constant and does not depend on the fibre content. for the considered 2D planar random fibre orientation, ν is close to a mean value of ≈ 0.33. This value is very close to that found in the litterature of analytical or numerical discrete models dedicated to the elasticity of papers, despite the current adopted micromechanics completely differs from that adopted in those works [6, 11, 10]. For example, the analytical model developped in the pioneering work of Cox [6] assumed that paper fibrous networks could be regarded as truss of unconnected elastic fibres that were assumed (i) to extend from one edge to the other of a network, (ii) to be uniquely loaded in tension. For purely 2D networks with planar random fibre orientation, he found a Poisson ratio of $\nu = 1/3$. Heyden and Gustafsson [11, 10], by performing discrete element simulations on cellulose fibrous networks with short fibres displaying finite tensile and bending elastic stiffnesses and with elastic bonds also found similar

results for 2D networks of fibres.

- A pronounced orthotropy is observed for the fibre networks with a fibre orientation distribution function close to that depicted in Fig. 11.3, *i.e.* $E_L \approx 3E_T$ with $E_T < E < E_L$, $\nu_{TL} \approx 3\nu_{LT}$ with $\nu_{LT} < \nu < \nu_{TL}$.

- Fig. 11.8 better illustrates the role of the fibre orientation on the elastic properties of the papers. Indeed, this figure shows their evolution as functions of the principal direction a_I of the second order fibre orientation tensor $\tilde{\boldsymbol{A}}$ and for a fibre content ϕ of 0.3 (for a planar random network, $a_I = 0.1$ whereas for fully alinged fibres $a_I = 1$). Strong increase and decrease of E_L and E_T with a_I are respectively observed (see Fig. 11.8(a)), whereas the shear modulus G_{LT} slightly decreases (Fig. 11.8(b)). Likewise, the Poisson ratios follow opposite evolutions: ν_{TL} strongly increases from 0.33 up to values large than 1 with a_I, whereas ν_{LT} falls progressively from 0.33 down to 0 as the fibre orientation intensity a_I is increased (Fig. 11.8(c)). Similar trends were observed by Heyden in her simulations for similar fibre orientation distribution functions [10].

- Fig. 11.9 proves that for the considered fibrous networks, the observed anisotropy is closely linked with the fourth order fibre orientation tensor $\tilde{\mathbb{A}}$. Indeed, this figures shows that the normalised non-zero in-plane components C_{ijkl}/A_{ijkl} (no summation on the indices) nearly follow the same trends whatever the considered orientation, *i.e.* planar random (Fig. 11.9(a)) and with a preferred fibre orientation along $\boldsymbol{e}_1$ (Fig. 11.9(a)). This important trend was already observed for the conductivity tensor of fibrous networks [27]. It is also interesting to notice that the analytical expressions Eqs.(11.41-11.43) fulfill this requirement.

- Whatever the considered fibre orientation distribution function, the evolutions of the moduli E_L, E_T and G_{LT} with the fibre content ϕ (displayed in Figs. 11.6 and 11.7) have been fitted with fourth order polynomial functions. Thus, they are very different from the affine evolutions proposed by most of the analytical models of the litterature [6] [26] [5] [12] [19] [20] [13]. They are also much sharper than the evolution predicted from the discrete element simulations carried out in [11] [10].

  On one hand, as already underlined when studying the rheology of planar concentrated fibre suspensions [16] or conduction phenomena in connected fibrous media with fibre-fibre interface barriers [27], the observed sharp evolutions are partly ascribed to the evolution of the coordination number $\bar{z}$ with ϕ. As processed microstructures follow the statistic proposed by the tube model, *i.e.* $\bar{z}$ is an affine function of ϕ (see Eq.(11.2.1) and Fig. 11.4), it is concluded from Eq.(11.24) that the $\phi-$increase of stress levels (or $\mathbb{C}$) induced by the increase of $\bar{z}$ conducts to an increase of the stress tensor $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}$ (or $\mathbb{C}$) as a second order polynomial function of ϕ (keeping in mind that $n \propto \phi$).

On the other hand, the observed increase is also related to the increase of the mean bonding degree ratio $\bar{b}$ with ϕ. According to Eq.(11.30), $\bar{b}$ is an affine function of ϕ. Combined with Eq.(11.24) and accounting for the previous remark, this is expected to yield to an increase of $\mathbb{C}$ as a fourth degree polynomial function of ϕ. Please notice that these trends are also taken into account in analytical expressions Eqs.(11.41-11.43).

11.5.3 Analytical *vs.* numerical models

In the previous subsection, we have shown that the analytical expressions followed, at least semi-quantitatively, trends obtained from discrete element simulations. The graphs plotted in Figs. 11.10 and 11.11 prove that analytical expressions Eqs.(11.41-11.43), despite their simplicity, fit fairly well trends gained from the simulations when the same microstructural and micro-mechanical parameters are given as input. Thus, provided that assumptions stated at the fibre scale to establish the present numerical and analytical models are relevant, such analytical estimates can be considered as accurate enough predictors of the in-plane elasticity of papers.

11.5.4 Comparison with experiments

As shown in chapters 6 and 7, the microstructural but also the macroscale Young's moduli of the model papers were characterised. The first ones were directly used as microscale inputs of the simulations and analytical preditions presented previously.

Thanks to these fine measurements, all the microscale parameters on the models were given, except the shear bond stiffness k. This unique unknown parameter was determined from inverse method by using the whole set of macroscale data. The value of $k = 2200$ N mm^{-3} was found to best fit these results. This is illustrated in Fig. 11.12. This figure proves that the proposed approach allows fairly nice predictions of the measured Young's moduli, for a rather wide range of fibre contents and for two different fibre orientation distribution.

11.6 Conclusion

In this chapter, we have proposed discrete models to predict the in-plane elastic properties of papers. These models were built from original experimental observations carried out at the fibre scale (chapters 6 and 7). Based on such evidences, some simplifying assumptions were stated both on the paper microstructures and micromechanics. Among them, it was assumed that fibre could be regarded as rigid rods and that the elastic deformation of paper was mainly related (i) to the rigid body motion of fibres (translations and rotations) and (ii) to the elastic deformation of fibre bonds zones (*i.e.* the bonds and their close neighbouring within

fibres) the mechanics of which was modeled by a simple set of microscale phenomenological constitutive equations. This strong assumption was motivated by the observed very weak interbond distances and bonding degree ratios of the characterised model papers. It will be reconsidered in the next chapter by taking into account the possible deformation of fibres far from bonding zones. Herein, it was upscaled by using the homogenisation method for periodic discrete structures, by taking advantage of the strong analogy of the present microscale problem with that already treated previously to model the rheology of highly concentrated fbre bundle suspensions. Therewith, two macroscale models were proposed. The first one used discrete element simulations, and the second analytical one postulates an additional set of microstructural and micromechanical assumptions. Both of them emphasized the leading roles of the fibre content, orientation and geometry on the macroscale elastic properties of paper. Despite its simplicity and its strong underlying hypotheses, the analytical model quantitatively well describes trends predicted by the numerical one. We have also shown that if relevant microstructure descritpors could be provided as microscale inputs, the prediction of the numerical and analytical models could nicely fit some of the elastic properties of planar random or orientated papers for a wide range of fibre contents, with only one unknown parameter, namely the shear bond stiffness.

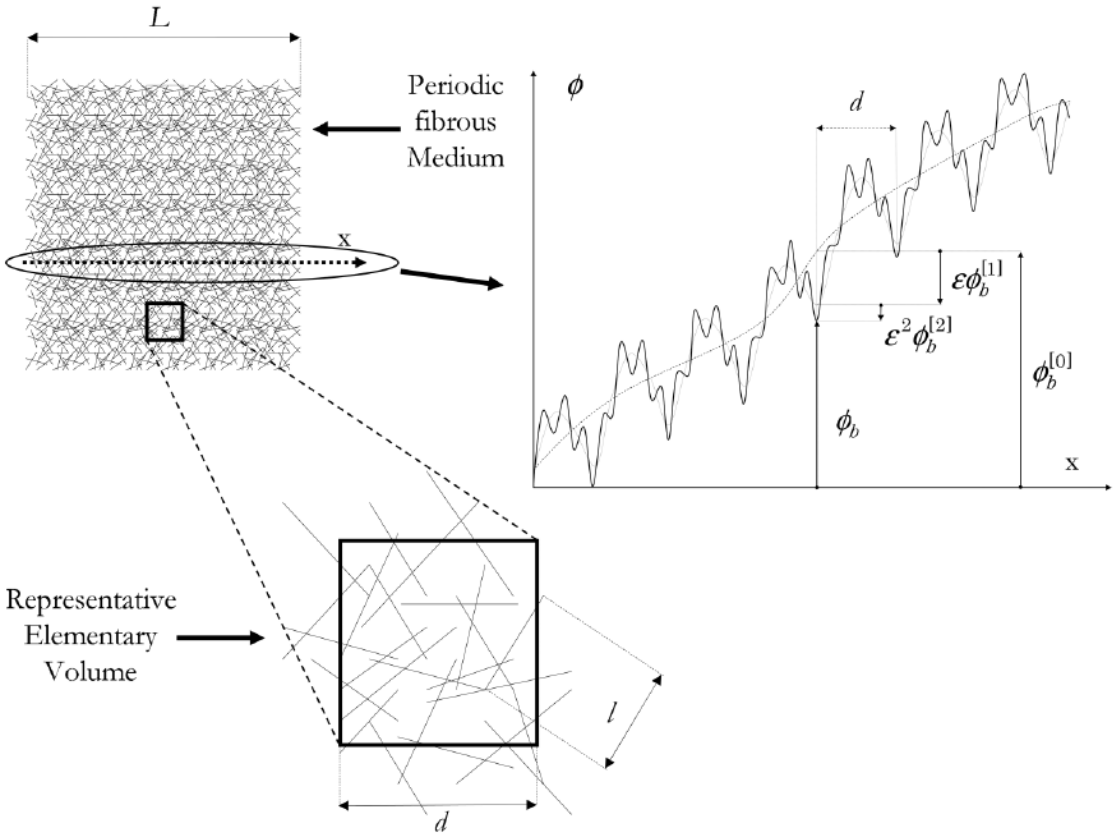


Figure 11.1: Basic principles of the homogenisation of perdiodic discrete structures and illustration of the asymptotic expansions (from [16]).

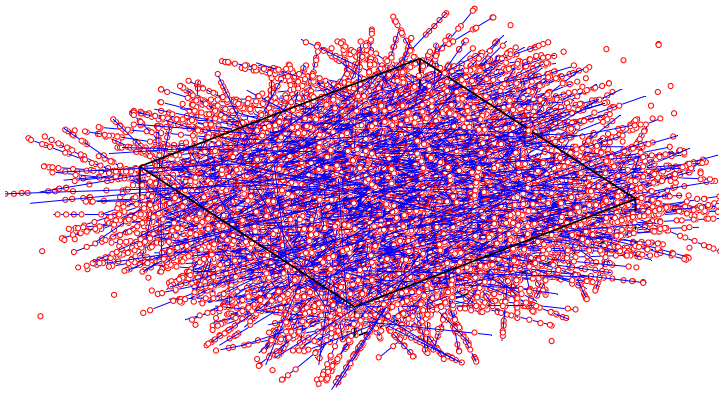


Figure 11.2: Example of idealised fibrous networks with planar random fibre orientation and a fibre content $\phi = 0.15$. The lines represent the fibre centrelines ($l = 2000$ μm), and circles the centres of bonds.

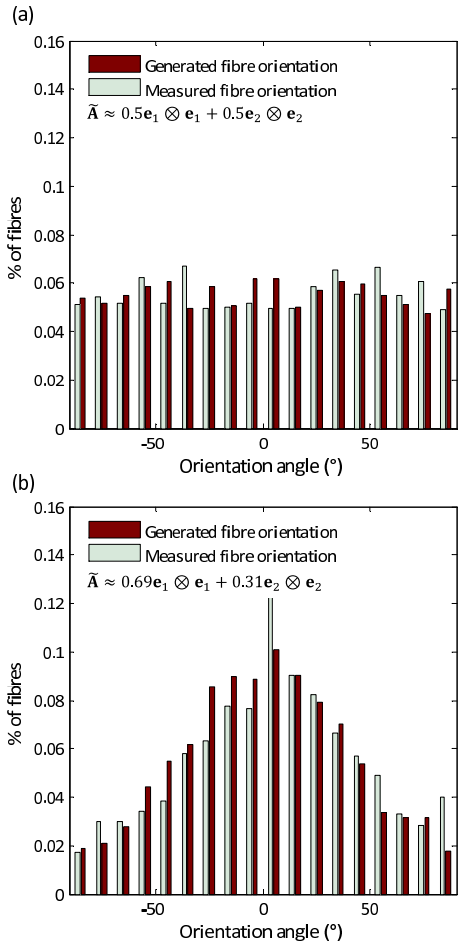


Figure 11.3: Comparisons of the fibre orientation histograms measured from the model papers with those obtained from the numerical procedure in cases of planar random fibre orientation (a), of a preferred moderate fibre alignment along the $\boldsymbol{e}_1$ direction (b).

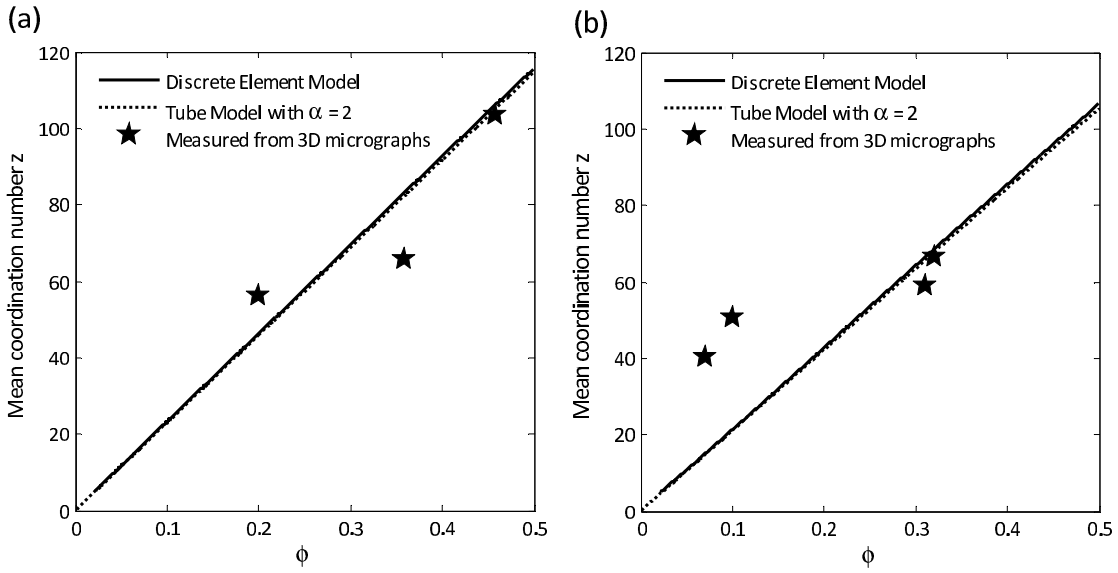


Figure 11.4: Comparisons of the evolution of the mean coordination numbers $\bar{z}$ measured from the model or estimated either from the discrete element code or the tube model 11.2.1 in cases of planar random fibre orientation (a), of a preferred moderate fibre alignment along the $\boldsymbol{e}_1$ direction (b).

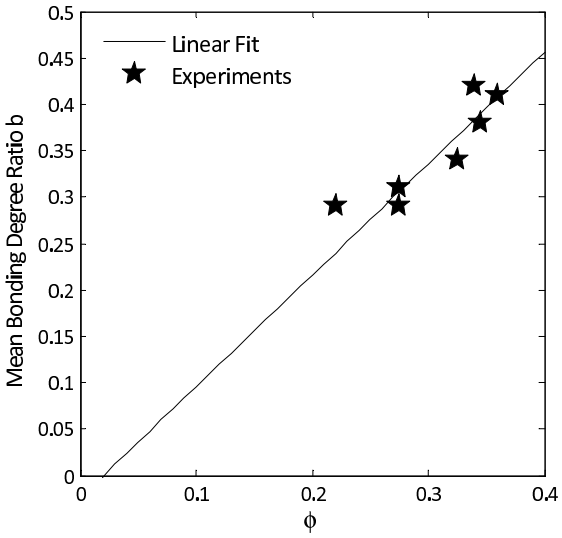


Figure 11.5: Evolution of the mean bonding degree ratio $\bar{b}$ with the fibre content ϕ for the studied planar random or orientated papers. The straight line is the fit used in the numerical and analytical models.

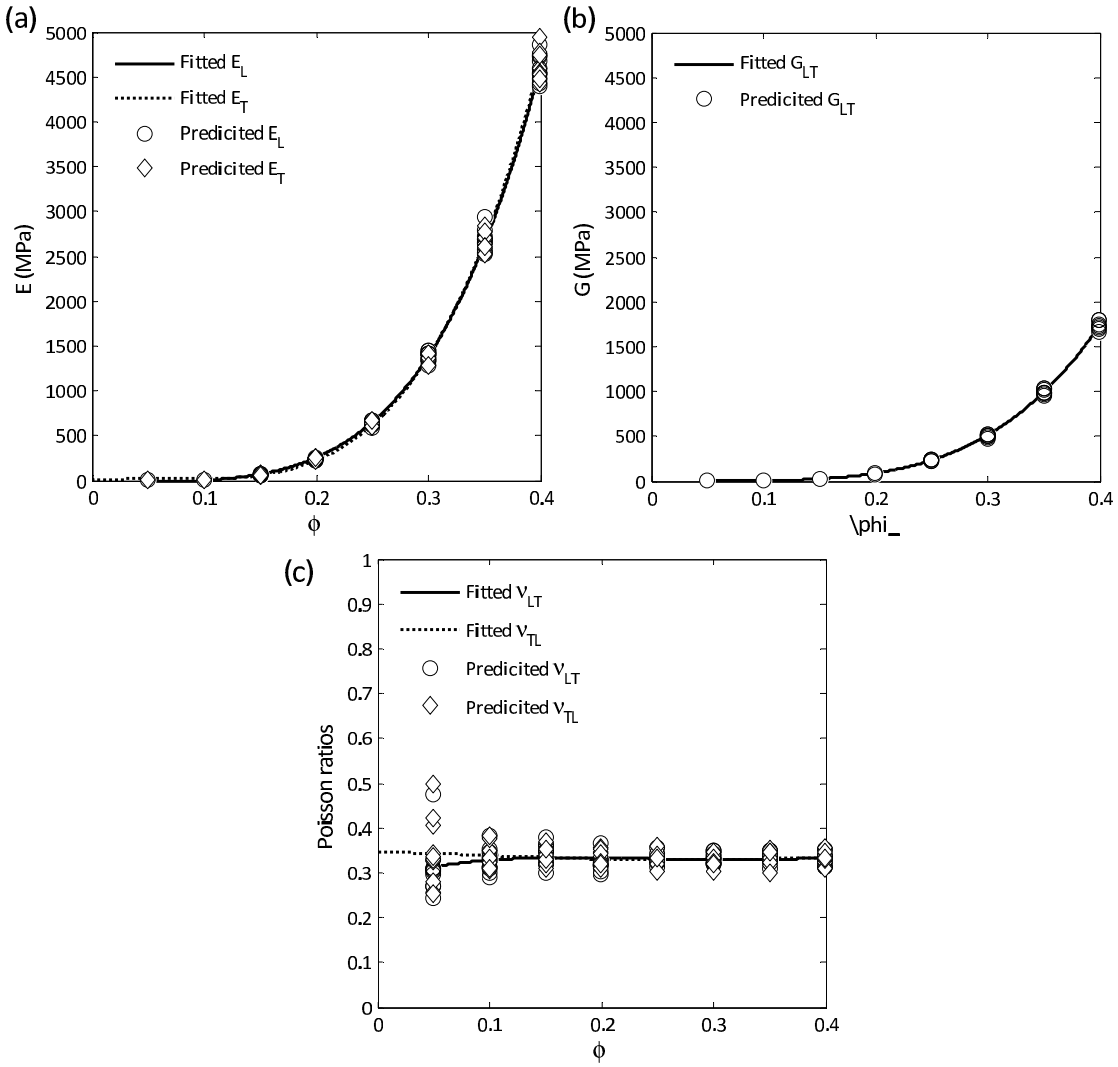


Figure 11.6: Evolutions of $E_L, E_T, G_{LT}, \nu_{LT}, \nu_{LT}$ with the fibre content for planar random fibre orientation. Marks are numerical results and the lines correspond to fits.

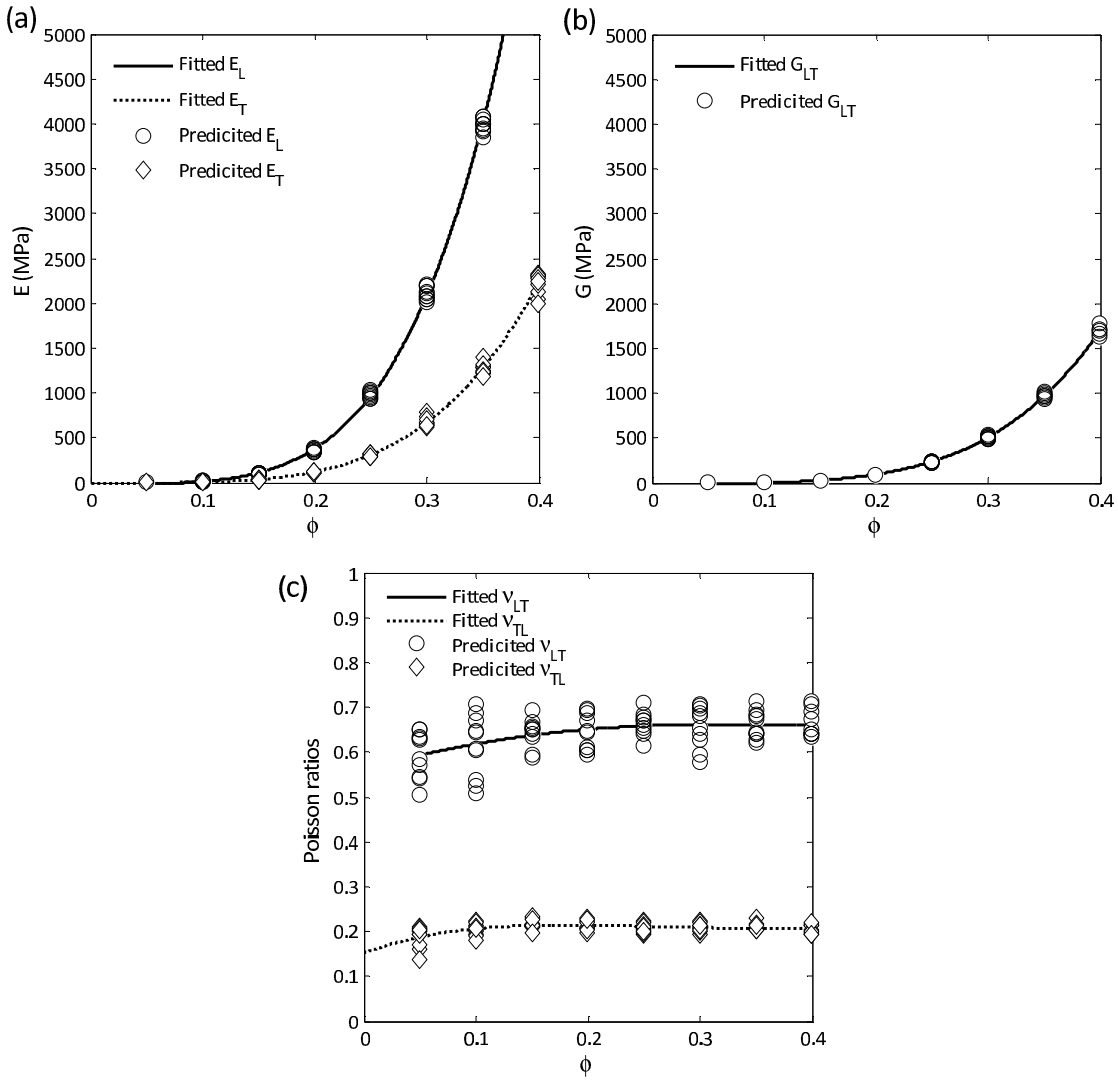


Figure 11.7: Evolutions of $E_L, E_T, G_{LT}, \nu_{LT}, \nu_{LT}$ with the fibre content for planar fibre orientation with preferred fibre orientation along the $\boldsymbol{e}_1$ direction. Marks are numerical results and the lines correspond to fits.

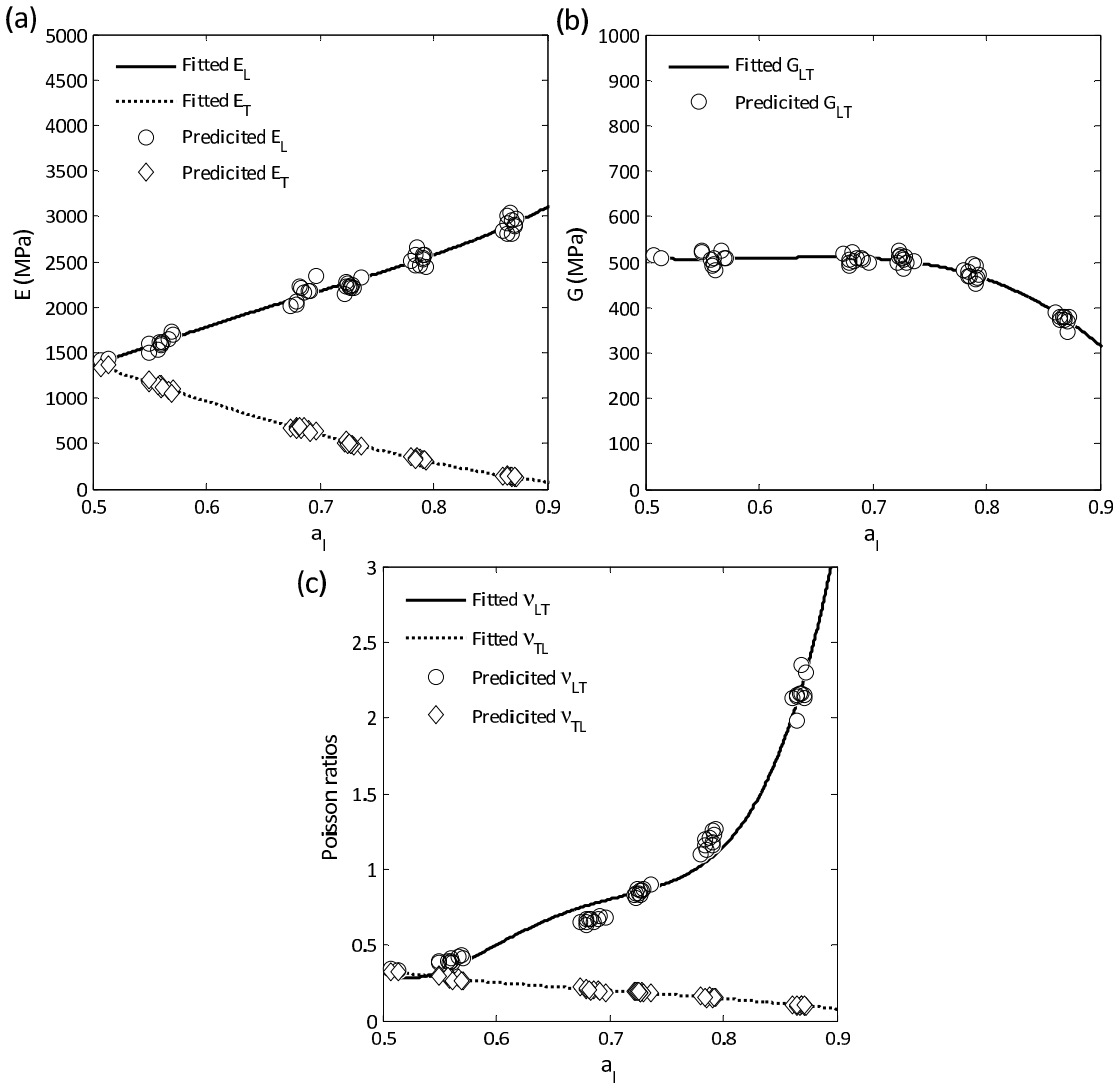


Figure 11.8: Evolutions of $E_L, E_T, G_{LT}, \nu_{LT}, \nu_{LT}$ with the principal value a_I of $\tilde{\boldsymbol{A}}$ for planar fibre orientation with preferred fibre orientation along the $\boldsymbol{e}_1$ direction. Marks are numerical results and the lines correspond to fits.

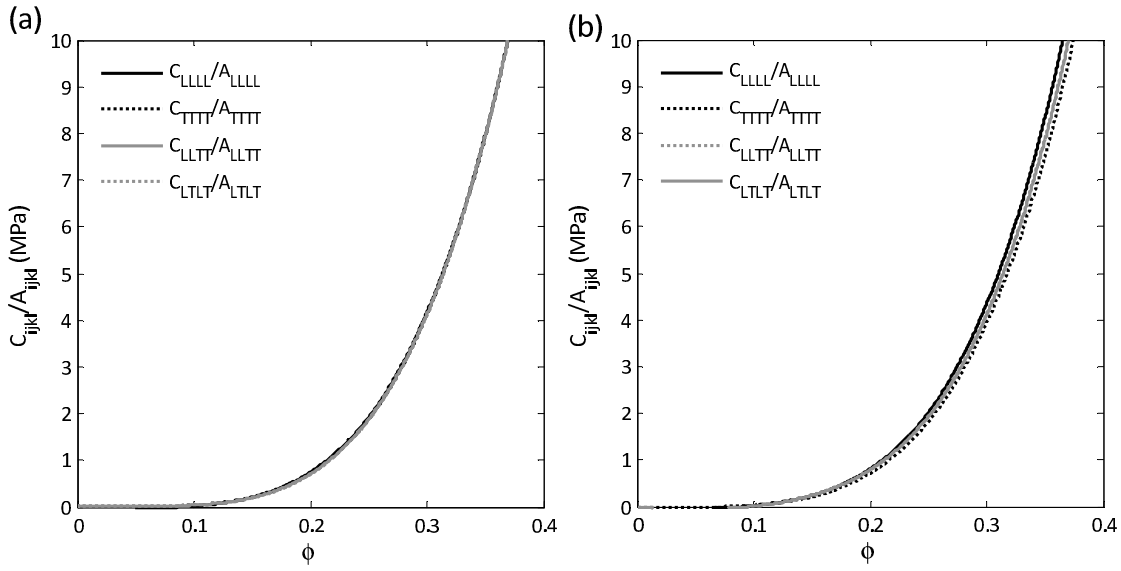


Figure 11.9: Evolutions of the normalised stiffness components C_{ijkl}/A_{ijkl} with the fibre content for planar fibre orientation with random fibre orientation (a) or preferred fibre orientation along the $\boldsymbol{e}_1$ direction (b). In this figure, only fits of the numerical results have been used to better analyse graphs.

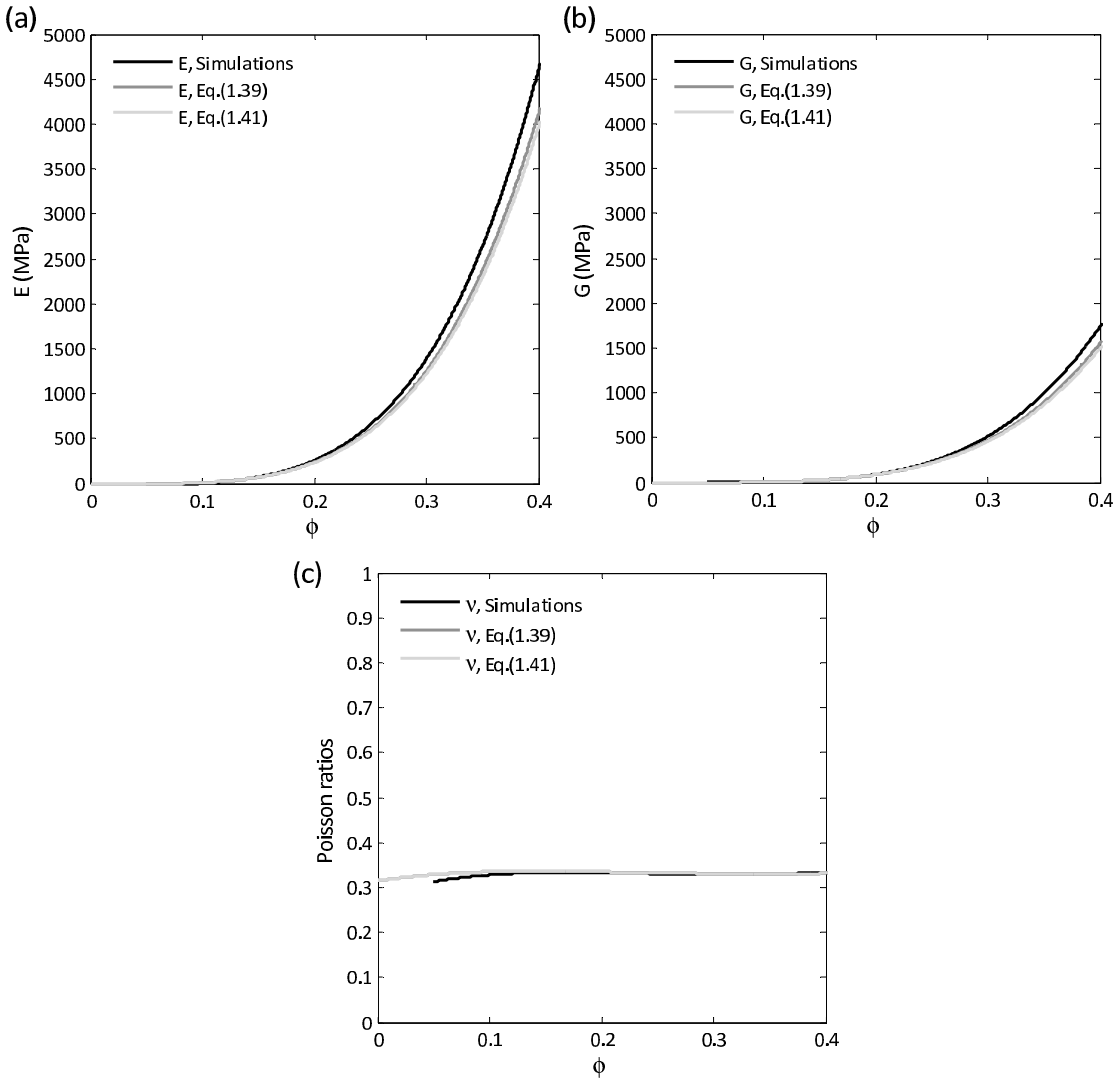


Figure 11.10: Evolutions of the Young moduli with the fibre content ϕ for planar random networks: comparison between the discrete element simulations and the proposed analytical models. Only fits of the numerical results have been used to better analyse graphs.

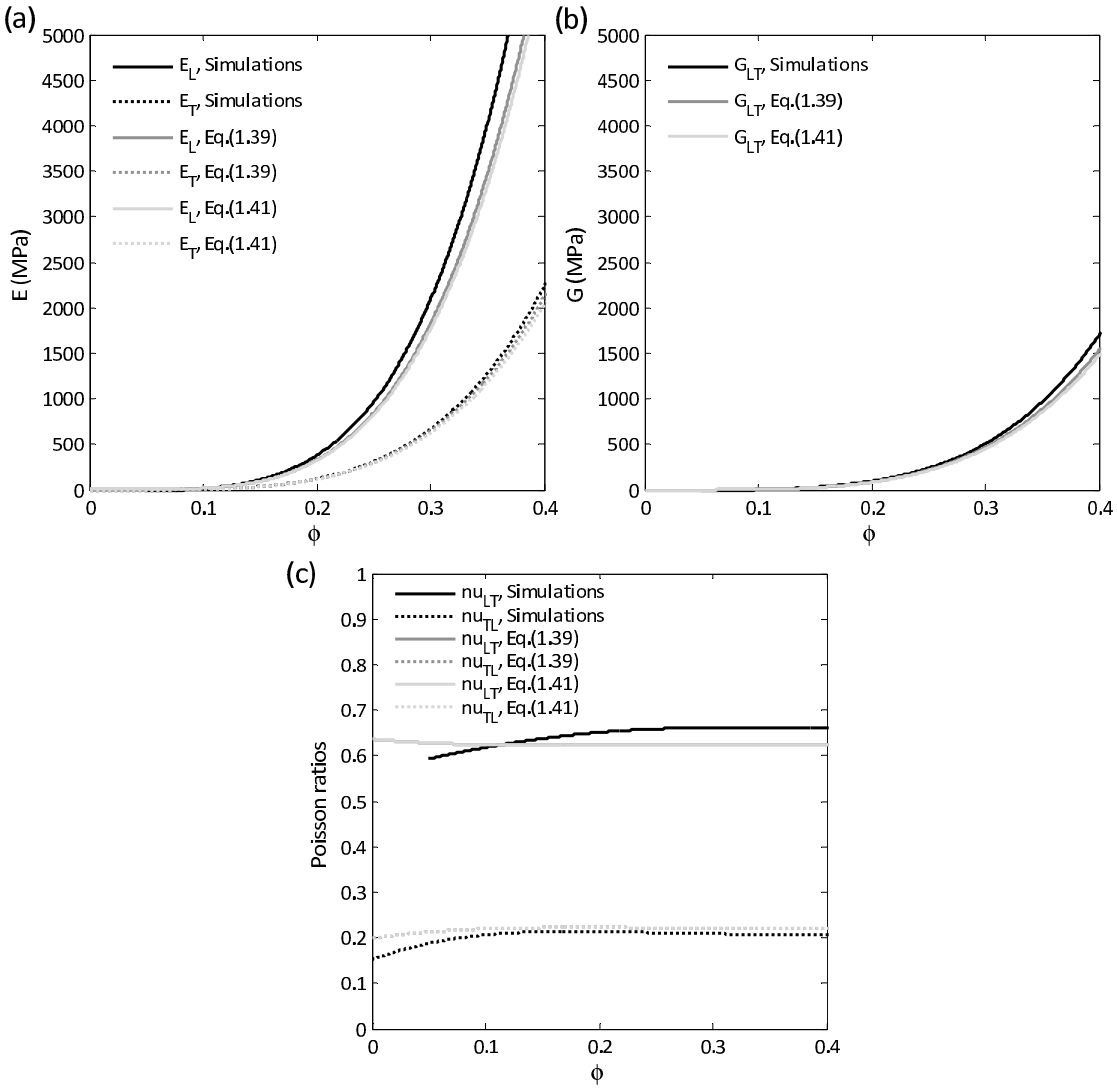


Figure 11.11: Evolutions of the Young moduli with the fibre content ϕ for orientated networks: comparison between the discrete element simulations and the proposed analytical models. Only fits of the numerical results have been used to better analyse graphs.

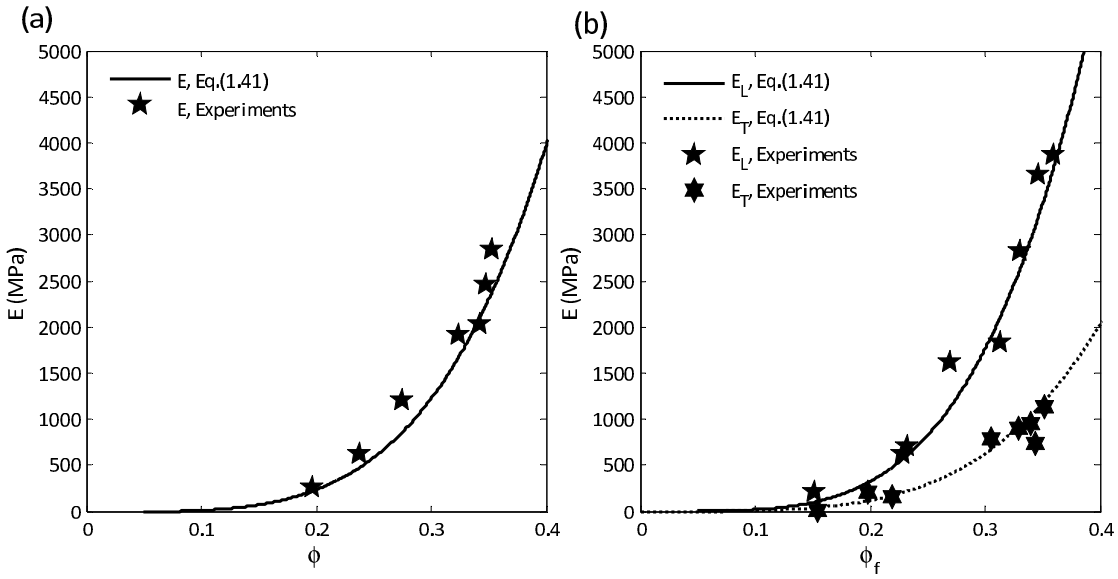


Figure 11.12: Evolutions of the Young moduli of model papers with the fibre content ϕ displaying an in-plane planar random fibre orientation (a) or a preferred fibre orientation along the $\boldsymbol{e}_1$ direction (b): comparison between the predictions of the analytical model Eq. (11.43) and the macroscale experiements.

Bibliography

[1] S.G. Advani and C.L. Tucker, The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites, *J. Rheol*, 3:751–784, 1987.

[2] J.-L. Auriault. Heterogeneous medium. is an equivalent macroscopic description possible? *Int. J. Eng. Sci.*, 29(7):785–795, 1991.

[3] A. Bensoussan, J.-L. Lions, and G. Papanicolaou. *Asymptotic Analysis for Periodic Structures*. North Holland, Amsterdam, 1978.

[4] C. Boutin and S. Hans. Homogenisation of periodic discrete medium: Application to dynamics framed structures. *Computers and Geotechnics*, 30:303–320, 2003.

[5] J.G. Campbell. Structural interpretation of paper elasticity. *Appita*, 16:130–137, 1963.

[6] H.L. Cox. The elasticity and strength of paper and other fibrous materials. *British J. Appl. Phys.*, 3:72–79, 1952.

[7] M Doi and S F Edwards. Dynamics of rod-like macromolecules in concentrated solution. *J. Chem. Soc. Faraday Trans. II*, 74(1):560–570, 1978.

[8] P.J.J. Dumont, S. Le Corre, L. Orgéas, and D. Favier. A numerical analysis of the evolution of bundle orientation in concentrated fibre-bundle suspensions. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 160:76–92, 2009.

[9] O. Guiraud, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, and S Rolland du Roscoat. Microstructure and deformation micro-mechanisms of concentrated fibre bundle suspensions: an analysis combining x-ray microtomography and pull-out tests. *J Rheol*, 56:593–623, 2012.

[10] S. Heyden. Network modelling for the evaluation of mechanical properties of cellulose fibre fluff. *PhD Thesis*, Lund Univ., Sweden, 2000.

[11] S. Heyden and P.J. Gustafsson. Simulation of fracture in a cellulose fibre network. *J. Pulp Paper Sci.*, 24:160–165, 1998.

[12] O.J. Kallmes, I.H. Stockel and G.A. Bernier. The Elastic Behaviour of Paper. *Pulp Pap. Mag. Can*, 64:449–456, 1963.

[13] O.J. Kallmes, G.A. Bernier and M. Perez. A mechanistic theory of the load-elongation properties of paper: Parts 1-4. *Pap. Technol. Ind.*, 18:222–228, 243–245, 283–285, 1977.

[14] S. Le Corre. Etude de la Mise En Forme Par Compression Des Sheet Molding Compounds. *PhD Thesis*, Univ. Grenoble, France, 2001.

[15] S. Le Corre, D. Caillerie, L. Orgéas, and D. Favier. Behavior of a net of fibers linked by viscous interactions: Theory and mechanical properties. *J. Mech. Phys. Solids*, 52:395–421, 2004.

[16] S. Le Corre, P. Dumont, L. Orgéas, and D. Favier. Rheology of highly concentrated planar fiber suspensions. *J. Rheol.*, 49:1029–1058, 2005.

[17] G. Moreau and D. Caillerie. Continuum modeling of lattice structures in large displacement framework. *Developments in computational techniques for structural engineering*, 20:53–70, 1995.

[18] L. Orgéas, P.J.J. Dumont, J.P.P. Vassal, O. Guiraud, V. Michaud, and D. Favier. In-plane conduction of polymer composites plates reinforced with architectured networks of copper fibres. *J. Mater. Sci.*, 47:2932–2942, 2012.

[19] D.H. Page. A Theory for the Tensile Strength of Paper. *Tappi*, 52:674–681, 1969.

[20] R.W. Perkins and R.E. Mark. On the structural theory of the elastic behavior of paper. *Tappi*, 59:118–120, 1976.

[21] F. Pradel. *Homogénéisation Des Milieux Continus et Discrets Périodiques Orientés. Une Application Aux Mousses*. PhD thesis, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Paris, France, 1998.

[22] S. Ranganathan and S.G. Advani. Fiber-fiber interactions in homogeneous flows of nondilute suspensions. *J. Rheol.*, 35:1499–1522, 1991.

[23] E. Sanchez-Palencia. *Non-Homogeneous Media and Vibration Theory*. Lecture Notes in Physics. Springer-Verlag, Berlin, Germany, 1980.

[24] S. Toll. Note: On the tube model for fiber suspensions. *J. Rheol.*, 37(1):123–125, 1993.

[25] H. Tollenaere and D. Caillerie. Continuous modeling of lattice structures by homogenization. *Adv. Eng. Soft.*, 29(7):699–705, 1998.

[26] J.A. Van den Akker. Some theoretical considerations on the mechanical properties of fibrous structures. *Trans. Brit. Paper and Board Makers' Assoc. Sympos. Consol. Paper Web*, London 205–241, 1962.

[27] J.-P. Vassal, L. Orgéas, D. Favier, J.-L. Auriault, and S. Le Corre. Upscaling the diffusion equations in particulate media made of highly conductive particles. II. application to fibrous materials. *Phys. Rev. E*, 77:011303, 2008.

Chapitre 12

Modélisation continue d'un réseau quasi périodique de poutres par homogénéisation discrète

12.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, une première modélisation discrète de réseaux de fibres de papier a été proposée. Cette modélisation reposait sur la méthode d'homogénéisation des structures discrètes. Dans ce chapitre, on revisite théoriquement le problème précédant en enrichissant les modélisations micromécaniques, *i.e.* en tenant compte de la possible flexibilité des fibres loin des zones de contacts.
Ainsi, on étudie, toujours dans le cadre des petites transformations, un réseau périodique de poutres droites déformables comportant un grand nombre de cellules élémentaires dans le but d'en déterminer une modélisation continue. Les poutres sont linéairement élastiques dans la modélisation de Timoshenko. Par rapport à une modélisation du type Euler-Bernouilli, cette approximation de la mécanique des fibres de papiers entre contacts prend sa justification dans les faibles distances entre contacts observé expérimentalement. En ce sens, elle se distingue des travaux antérieurs de Pradel (1998) [4] et Boutin et Hans (2000) [1].
Les liaisons entre poutres sont de deux types. Les poutres peuvent être liées entre elles par des jonctions rigides bloquant à la fois les déplacements et les rotations relatifs des poutres liées. Elles peuvent aussi interagir deux à deux ponctuellement par des rappels élastiques en déplacement et rotations, ce type d'interaction est appelé *contact* dans la suite. En ce sens également, l'étude présentée ci-après se distingue des travaux de la littérature.
Les nœuds du réseau sont les jonctions rigides ainsi que les points de contact élastique, dans ce dernier cas, il y a un nœud sur chacune des poutres en contact.

Pour simplifier le problème, nous supposerons que la structure n'est chargée que par des forces ponctuelles appliquées en ses nœuds.

Compte tenu du chargement considéré, les équations d'équilibre peuvent être intégrées sur les segments de poutres entre deux nœuds consécutifs, ce qui permet de déterminer une loi de comportement *intégrée* donnant les efforts dans les segments de poutre en fonction de la cinématique, déplacements et rotations, de ses extrémités. L'équilibre de la structure se ramène à celui de ses nœuds soumis à des forces extérieures, aux forces et moments dus aux segments de poutres et/ou aux contacts entre poutres. Les interactions entre nœuds sont donc de deux types, celles dues aux segments de poutres, appelées par conséquent *segments*, et celles de contacts.

12.2 Description du réseau de poutres

12.2.1 Numérotation et topologie

Les nœuds, définis dans 12.1, sont numérotés $\tilde{n}$ et l'ensemble des nœuds est noté $\tilde{\mathcal{N}}$.
Toutes les interactions, segments et contacts, sont numérotés par $\tilde{a}$, l'ensemble des interactions est noté $\widetilde{\mathcal{A}}$. Quand cela est nécessaire, les interactions de type contacts et segments sont respectivement notés $\tilde{c} \in \tilde{\mathcal{C}}$ et $\tilde{s} \in \tilde{\mathcal{S}}$. On a évidemment $\widetilde{\mathcal{A}} = \tilde{\mathcal{C}} \cup \tilde{\mathcal{S}}$.
Les interactions sont orientées, soit par l'orientation de la poutre pour les interactions de type segment comme indiqué dans l'annexe A soit pour les interactions de contact en choisissant (arbitrairement) l'un des deux nœuds comme origine et l'autre comme extrémité. On note $\widetilde{O}(\tilde{a})$ l'origine de l'interaction $\tilde{a}$ et $\widetilde{E}(\tilde{a})$ son extrémité. $\widetilde{O}^{-1}(\tilde{n})$ et $\widetilde{E}^{-1}(\tilde{n})$ sont respectivement l'ensemble des interactions $\tilde{a}$ dont $\tilde{n}$ est l'origine, respectivement l'extrémité.
La liste des interactions $\tilde{a} \in \mathcal{A}$ avec les nœuds origine $\widetilde{O}(\tilde{a})$ et extrémité $\widetilde{E}(\tilde{a})$ définit complètement la topologie du réseau de poutre.

12.2.2 Géométrie et cinématique du réseau

La géométrie du réseau est complètement définie par celle de ces nœuds. La position du nœud $\tilde{n}$ est notée $\vec{x}^{\tilde{n}}$. Les poutres étant droites, les positions des extrémités d'un segment de poutre permettent d'en déterminer le vecteur «barre» $\vec{B}^{\tilde{s}}$, la longueur $\ell^{\tilde{s}}$ et le vecteur tangent $\vec{\tau}^{\tilde{s}}$:

$$\vec{B}^{\tilde{s}} = \vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{s})} - \vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{s})}$$
$$\vec{B}^{\tilde{s}} = \ell^{\tilde{s}} \vec{\tau}^{\tilde{s}} \text{ avec } \ell^{\tilde{s}} = \left\| \vec{B}^{\tilde{s}} \right\|$$

Comme les deux nœuds d'un contact ont la même position le vecteur «barre» correspondant est nul :

$$\forall \tilde{c} \in \mathscr{C}\,,\ \vec{B}^{\tilde{c}} = 0$$

Il est cependant utile d'introduire le vecteur «barre» pour les contacts car cela permet d'uniformiser la prise en compte des interactions.
La géométrie du réseau étant celle de ces nœuds, la cinématique du réseau est de même définie par celle des nœuds qui consiste en un déplacement et une rotation. Le déplacement, respectivement la rotation, du nœud $\tilde{n}$ sont notées $\vec{u}^{\tilde{n}}$ et $\vec{\theta}^{\tilde{n}}$.

12.2.3 Efforts et lois de comportement

On note $\vec{T}^{O\tilde{a}}$ et $\vec{M}^{O\tilde{a}}$ la force et le moment à l'origine $\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}$ exercés par l'interaction $\tilde{a}$ sur le nœud $\tilde{O}(\tilde{a})$. De même, $-\vec{T}^{E\tilde{a}}$ et $-\vec{M}^{E\tilde{a}}$ sont la force et le moment à l'extrémité $\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}$ exercés par l'interaction $\tilde{a}$ sur le nœud $\tilde{E}(\tilde{a})$. En raison du théorème d'action réaction, $\vec{T}^{E\tilde{a}} = \vec{T}^{O\tilde{a}}$ et on note $\vec{T}^{\tilde{a}}$ la force exercée par par l'interaction $\tilde{a}$ sur le nœud $\tilde{O}(\tilde{a})$, on a donc $\vec{T}^{\tilde{a}} = \vec{T}^{O\tilde{a}}$. Par contre, pour les segments, on a (voir (A.3b)) :

$$\vec{M}^{E\tilde{s}} = \vec{M}^{O\tilde{s}} - \vec{B}^{\tilde{s}} \wedge \vec{T}^{\tilde{s}}$$

et il peut être utile de conserver les deux notations $\vec{M}^{O\tilde{s}}$ et $\vec{M}^{E\tilde{s}}$ et de généraliser cette notation aux contacts même si pour ces contacts $\vec{M}^{O\tilde{c}} = \vec{M}^{E\tilde{c}}$. On a donc :

$$\forall \tilde{a} \in \tilde{\mathscr{A}}\,,\ \vec{M}^{E\tilde{a}} = \vec{M}^{O\tilde{a}} - \vec{B}^{\tilde{a}} \wedge \vec{T}^{\tilde{a}} \tag{12.1}$$

On note néanmoins $\vec{M}^{\tilde{a}}$ le moment à l'origine $\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}$ exercé par l'interaction $\tilde{a}$ sur le nœud $\tilde{O}(\tilde{a})$, c'est-à-dire $\vec{M}^{\tilde{a}} = \vec{M}^{O\tilde{a}}$.
$\vec{F}^{e/\tilde{n}}$ désigne la force exercée par l'extérieur sur le nœud $\vec{x}^{\tilde{n}}$.

Comportement des segments

Les lois de comportement des segments sont données par (A.12), ce qui s'écrit pour le segment $\tilde{s}$:

$$\begin{aligned}\vec{T}^{\tilde{s}} &= \frac{E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}}{\ell^{\tilde{s}}}\left(\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right).\vec{\tau}^{\tilde{s}}\right)\vec{\tau}^{\tilde{s}}\\ &\quad+12\frac{E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}}{\ell^{\tilde{s}}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\check{I}^{\tilde{s}}\left(P_{\Pi^{\tilde{s}}@}\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)+\vec{B}^{\tilde{s}}\wedge\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\frac{1}{2}\vec{B}^{\tilde{s}}\wedge\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)\right) \qquad (12.2a)\\ \vec{M}^{\tilde{s}} &= \vec{M}^{O\tilde{s}}=\hat{k}^{\tilde{s}}G^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}\ell^{\tilde{s}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\left(\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right).\vec{\tau}^{\tilde{s}}\right)\vec{\tau}^{\tilde{s}}\\ &\quad+E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\check{I}^{\tilde{s}}\left(6\vec{\tau}^{\tilde{s}}\wedge\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)-6\ell^{\tilde{s}}P_{\Pi^{\tilde{s}}@}\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}+\ell^{\tilde{s}}\beta^{\tilde{s}}P_{\Pi^{\tilde{s}}@}\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)\right) \qquad (12.2b)\end{aligned}$$

où $P_{\Pi^{\tilde{s}}}$ est la projection orthogonale sur le plan de la section droite du segment.

Comportement des contacts

En raison du principe d'objectivité des lois de comportement, les lois, linéaires, des contacts sont nécessairement de la forme : :

$$\begin{aligned}\vec{T}^{\tilde{c}} &= H^{\tilde{c}}_{TU@}\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{c})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{c})}\right)+H^{\tilde{c}}_{T\theta@}\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{c})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{c})}\right)\\ \vec{M}^{\tilde{c}} &= H^{\tilde{c}}_{TMu@}\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{c})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{c})}\right)+H^{\tilde{c}}_{M\theta@}\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{c})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{c})}\right)\end{aligned}$$

Loi de comportement des interactions

On peut voir, et cela est plus évident dans les calculs de l'annexe A, que les lois (12.2) donnent $\vec{T}^{\tilde{s}}$ et $\vec{M}^{\tilde{s}}$ comme fonctions linéaires de $\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{s})}+\vec{B}^{\tilde{s}}\wedge\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}$ et $\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{s})}$ et, comme $\vec{B}^{\tilde{c}}=0$ pour les contact, on peut uniformiser la formulation des lois de comportement des interactions en les écrivant :

$$\forall\,\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}},\ \vec{T}^{\tilde{a}}=H^{\tilde{a}}_{TU@}\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{a})}+\vec{B}^{\tilde{a}}\wedge\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\right)+H^{\tilde{c}}_{T\theta@}\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) \qquad (12.4a)$$

$$\vec{M}^{\tilde{a}}=H^{\tilde{a}}_{TMu@}\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{a})}+\vec{B}^{\tilde{a}}\wedge\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\right)+H^{\tilde{a}}_{M\theta@}\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) \qquad (12.4b)$$

où les $H^{\tilde{a}}_{TU}$, $H^{\tilde{a}}_{T\theta}$ $H^{\tilde{a}}_{MU}$ et $H^{\tilde{a}}_{M\theta}$ sont des applications linéaires.

D'après (12.2), pour les segments de poutre, on a :

$$
\begin{aligned}
H^{\tilde{s}}_{TU} &= \frac{E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}}{\ell^{\tilde{s}}}\vec{\tau}^{\tilde{s}}\otimes\vec{\tau}^{\tilde{s}} + 12\frac{E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}}{\ell^{\tilde{s}}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\check{I}^{\tilde{s}}\left(P_{\Pi^{\tilde{s}}@}\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)+\vec{B}^{\tilde{s}}\wedge\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}\right)\\
H^{\tilde{s}}_{T\theta} &= -6\frac{E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}}{\ell^{\tilde{s}}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\check{I}^{\tilde{s}}\left(-\frac{1}{2}\vec{B}^{\tilde{s}}\wedge\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)\right)\\
H^{\tilde{s}}_{MU} &= E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\check{I}^{\tilde{s}}\left(6\vec{\tau}^{\tilde{s}}\wedge\left(\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)-6\ell^{\tilde{s}}P_{\Pi^{\tilde{s}}@}\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}+\ell^{\tilde{s}}\beta^{\tilde{s}}P_{\Pi^{\tilde{s}}@}\left(\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{s})}-\vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{s})}\right)\right)\\
H^{\tilde{s}}_{M\theta} &= \hat{k}^{\tilde{s}}G^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}\ell^{\tilde{s}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\vec{\tau}^{\tilde{s}}\otimes\vec{\tau}^{\tilde{s}} + E^{\tilde{s}}A^{\tilde{s}}\left(e^{\tilde{s}}\right)^2\check{I}^{\tilde{s}}\ell^{\tilde{s}}\beta^{\tilde{s}}P_{\Pi^{\tilde{s}}}
\end{aligned}
$$

12.2.4 Equilibre d'un réseau de poutres en interactions ponctuelles

Équilibre du réseau de poutres - Équilibre des nœuds du réseau

L'équilibre du réseau de poutres se résume à celui de ses nœuds qui consiste à annuler la somme des forces et des moments appliqués à chaque nœud, c'est-à-dire :
pour les résultantes :

$$
\forall\tilde{n}\in\widetilde{\mathcal{N}},\ \sum_{\tilde{a}\in\widetilde{O}^{-1}(\tilde{n})}\vec{T}^{\tilde{a}}-\sum_{\tilde{a}\in\widetilde{E}^{-1}(\tilde{n})}\vec{T}^{\tilde{a}}+\vec{F}^{e/\tilde{n}}=0 \tag{12.5}
$$

pour les moments en $\vec{x}^{\tilde{n}}$:

$$
\forall\tilde{n}\in\widetilde{\mathcal{N}},\ \sum_{\tilde{a}\in\widetilde{O}^{-1}(\tilde{n})}\vec{M}^{O\tilde{a}}-\sum_{\tilde{a}\in\widetilde{E}^{-1}(\tilde{n})}\vec{M}^{E\tilde{a}}=0 \tag{12.6}
$$

soit en tenant compte de (12.1) :

$$
\forall\tilde{n}\in\widetilde{\mathcal{N}},\ \sum_{\tilde{a}\in\widetilde{O}^{-1}(\tilde{n})}\vec{M}^{\tilde{a}}-\sum_{\tilde{a}\in\widetilde{E}^{-1}(\tilde{n})}\left(\vec{M}^{\tilde{a}}-\vec{B}^{\tilde{a}}\wedge\vec{T}^{\tilde{a}}\right)+\vec{c}^{e/\tilde{n}}=0 \tag{12.7}
$$

Formulation en puissances virtuelles de l'équilibre du réseau

Pour obtenir la formulation en puissances virtuelles de l'équilibre du réseau, on multiplie l'équation (12.5) par la vitesse virtuelle $\vec{v}^{\tilde{n}}$ et on somme sur tous les nœuds du réseau :

$$
\forall\vec{v}^{\tilde{n}},\ \sum_{\tilde{n}\in\widetilde{\mathcal{N}}}\left(\sum_{\tilde{a}\in\widetilde{O}^{-1}(\tilde{n})}\vec{T}^{\tilde{a}}-\sum_{\tilde{a}\in\widetilde{E}^{-1}(\tilde{n})}\vec{T}^{\tilde{a}}\right)\cdot\vec{v}^{\tilde{n}}+\sum_{\tilde{n}\in\widetilde{\mathcal{N}}}\vec{F}^{e/\tilde{n}}\cdot\vec{v}^{\tilde{n}}=0
$$

Ce qui, en sommant sur les interactions, s'écrit :

$$
\forall\vec{v}^{\tilde{n}},\ -\sum_{\tilde{a}\in\widetilde{\mathscr{A}}}\vec{T}^{\tilde{a}}\cdot\left(\vec{v}^{\widetilde{E}(\tilde{a})}-\vec{v}^{\widetilde{O}(\tilde{a})}\right)+\sum_{\tilde{n}\in\widetilde{\mathcal{N}}}\vec{F}^{e/\tilde{n}}\cdot\vec{v}^{\tilde{n}}=0 \tag{12.8}
$$

En procédant de même à partir de l'équation d'équilibre (12.7), on obtient :

$$\forall \vec{\omega}^{\tilde{n}}, -\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}\left(\vec{M}^{E\tilde{a}}.\vec{\omega}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{M}^{O\tilde{a}}.\vec{\omega}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)=0 \tag{12.9}$$

Ce qui donne en ajoutant à (12.8) :

$$\forall \vec{v}^{\tilde{n}},\vec{\omega}^{\tilde{n}}, -\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}\left(\vec{T}^{\tilde{a}}.\left(\vec{v}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{v}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)+\vec{M}^{E\tilde{a}}.\vec{\omega}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{M}^{O\tilde{a}}.\vec{\omega}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)+\sum_{\tilde{n}\in\widetilde{\mathscr{N}}}\vec{F}^{e/\tilde{n}}\cdot\vec{v}^{\tilde{n}}=0 \tag{12.10}$$

La formulation faible de la relation (12.1) s'écrit :

$$\forall \vec{W}^{\tilde{a}}, \sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}\left(\vec{M}^{E\tilde{a}}-\vec{M}^{O\tilde{a}}+\left(\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)\wedge\vec{T}^{\tilde{a}}\right).\vec{W}^{\tilde{a}}=0$$

en ajoutant cette formulation à (12.10), il vient :

$$\begin{aligned}\forall \vec{v}^{\tilde{n}},\vec{\omega}^{\tilde{n}}, &-\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}\vec{T}^{\tilde{a}}.\left(\vec{v}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{W}^{\tilde{a}}\wedge\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{v}^{\tilde{O}(\tilde{a})}+\vec{W}^{\tilde{a}}\wedge\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)\\ &-\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}\vec{M}^{E\tilde{a}}.\left(\vec{\omega}^{\tilde{E}(\tilde{a})}-\vec{W}^{\tilde{a}}\right)-\vec{M}^{O\tilde{a}}.\left(\vec{\omega}^{\tilde{O}(\tilde{a})}-\vec{W}^{\tilde{a}}\right)\\ &+\sum_{\tilde{n}\in\widetilde{\mathscr{N}}}\vec{F}^{e/\tilde{n}}\cdot\vec{v}^{\tilde{n}}=0\end{aligned}$$

12.3 Modélisation continue d'un réseau répétitif de poutres

12.3.1 Description topologique et géométrique d'un réseau répétitif de poutres

Les structures considérées dans ces paragraphes sont faites de la répétition qu'on espère périodique d'une cellule de base. La cellule est constituée de nœuds numérotés n et d'interactions numérotées a, l'ensemble des nœuds de la cellule est noté $\mathscr{N}$, celui des interactions $\mathscr{A}$. La topologie de la structure est répétitive, les cellules la constituant sont numérotées par $\underline{\nu}$ où $\underline{\nu}$ peut être égal à (ν^1) pour des structures de type curviligne ou (ν^1,ν^2) pour des structures de type surfacique ou (ν^1,ν^2,ν^3) pour des structures de type volumique. Les nœuds de la structures sont numérotées $\tilde{n}=(\underline{\nu},n)$, ce qui signifie que $\tilde{n}$ est le nœud n de la cellule $\underline{\nu}$, de la même façon les interactions sont numérotées $\tilde{a}=(\underline{\nu},a)$. Les interactions de la structure sont orientées, par convention, l'origine $\tilde{O}(\tilde{a})$ de l'interaction $\tilde{a}=(\underline{\nu},a)$ est le nœud $(\underline{\nu},O(a))$ de la même cellule que $\tilde{a}$, l'extrémité $\tilde{E}(\tilde{a})$ de cette interaction est le nœud $(\underline{\nu}+\underline{\delta}^a,E(a))$ de la même cellule que $\tilde{a}$ ($\underline{\delta}^a=0$) ou d'une cellule voisine ($\underline{\delta}^a\neq 0$).

12.3.2 Suite de réseaux répétitifs

On considère une suite de réseaux périodiques comportant de plus en plus de cellules. Ces réseaux sont paramétrés par un petit paramètre ϵ qui est de l'ordre $N_C^{-1/D}$ où C est le nombre de cellule et d la dimension du problème. Les périodes $\epsilon\vec{Y}_i$ sont homothétiques dans le rapport ϵ des vecteurs $\vec{Y}_i$.

Géométrie et caractéristiques géométriques des poutres

Le réseau étant exactement périodique de périodes $\epsilon\vec{Y}_i$, les positions des nœuds du réseau sont données par :

$$\forall \tilde{n} = \left(\underline{\nu}, n\right), \vec{x}^{\tilde{n}} = \vec{\varphi}\left(\underline{\lambda}^{\epsilon}\right) + \epsilon\vec{x}^{n}$$

où $\underline{\lambda}^{\epsilon} = \epsilon\underline{\nu}$ et :

$$\vec{\varphi}\left(\underline{\lambda}\right) = \lambda^i \vec{Y}_i$$

On en déduit pour une interaction $\tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right)$:

$$\forall \tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right), \vec{B}^{\tilde{a}} = \epsilon\left(\nu^i + \delta^{ai}\right)\vec{Y}_i + \epsilon\vec{x}^{E(a)} - \epsilon\nu^i\vec{Y}_i - \epsilon\vec{x}^{O(a)}$$

soit :

$$\forall \tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right), \vec{B}^{\tilde{a}} = \epsilon\left(\vec{x}^{E(a)} - \vec{x}^{O(a)} + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)$$

en posant :

$$\vec{B}^{a} = \vec{x}^{E(a)} - \vec{x}^{O(a)} \tag{12.11}$$

la relation devient :

$$\forall \tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right), \vec{B}^{\tilde{a}} = \epsilon\left(\vec{B}^{a} + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \tag{12.12}$$

On en déduit :

$$\forall \tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right), \ell^{\tilde{a}} = \epsilon\ell^{a}$$

où :

$$\ell^{a} = \left\|\vec{B}^{a} + \vec{Y}_i\delta^{ai}\right\|$$

Pour les contacts, on a $\vec{x}^{E(c)} - \vec{x}^{O(c)}$ et $\underline{\delta}^c = 0$, et on retrouve bien que $\ell^c = 0$. Pour les segments, on a aussi :

$$\forall \tilde{s} = \left(\underline{\nu}, s\right), \vec{\tau}^{\tilde{s}} = \vec{\tau}^s$$

où :

$$\vec{\tau}^s = \frac{\vec{B}^s + \vec{Y}_i \delta^{si}}{\ell^s}$$

Les longueurs $\ell^{\tilde{a}}$ sont d'ordre ϵ, on suppose que la longueur caractéristique $r^{\tilde{s}}$ de la section droite est également d'ordre ϵ, ce qui fait que l'aire $A^{\tilde{s}}$ est d'ordre ϵ^2 et l'élancement $e^{\tilde{s}}$ est d'ordre 1 (ϵ^0), l'inertie réduite $\hat{I}^{\tilde{s}}$ est sans dimension et d'ordre 1 :

$$\begin{aligned}
\ell^{\tilde{s}} &= \epsilon \ell^s \\
e^{\tilde{s}} &= e^s \\
A^{\tilde{s}} &= \epsilon^2 A^s \\
\hat{I}^{\tilde{s}} &= \hat{I}^s
\end{aligned}$$

Mécanique

On suppose que les modules d'Young $E^{\tilde{a}}$ et de cisaillement $G^{\tilde{a}}$ sont d'ordre 0 par rapport à ϵ, ce qu'on écrit :

$$\begin{aligned}
E^{\tilde{a}} &= E^a \\
G^{\tilde{a}} &= G^a
\end{aligned}$$

Le coefficient α de la loi de Timoshenko étant sans dimension, il est d'ordre ϵ^0, on en déduit que $e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha}$ est d'ordre ϵ^0 ainsi que les $\check{I}^{\tilde{s}}$ et $\beta^{\tilde{s}}$ de (12.2b).

On a $E^{\tilde{s}} A^{\tilde{s}} = \epsilon E^s A^s$, ce qui fait que les coefficients en facteur des déplacements, respectivement des rotations, dans la loi de comportement (12.2a) sont d'ordre ϵ et ϵ^2, de même, les coefficients en facteur des déplacements, respectivement des rotations, dans la loi de comportement (12.2b) sont d'ordre ϵ^2 et ϵ^3. On suppose le même comportement vis-à-vis de ϵ pour les applications linéaires $H^{\tilde{c}}_{TU}$, $H^{\tilde{c}}_{T\theta}$ $H^{\tilde{c}}_{MU}$ et $H^{\tilde{c}}_{M\theta}$ des lois de contact. On a donc quelle

que soit la nature de l'interaction : :

$$H^{\tilde{a}}_{TU} = \epsilon H^{a}_{TU} \tag{12.13a}$$
$$H^{\tilde{a}}_{T\theta} = \epsilon^2 H^{a}_{T\theta} \tag{12.13b}$$
$$H^{\tilde{a}}_{MU} = \epsilon^2 H^{a}_{MU} \tag{12.13c}$$
$$H^{\tilde{a}}_{M\theta} = \epsilon^3 H^{a}_{M\theta} \tag{12.13d}$$

Forces extérieures

Les forces extérieures appliquées aux nœuds sont d'ordre ϵ^3 (3 pour une homogénéisation tridimensionnelle) :

$$\vec{F}^{e/\tilde{n}} = \epsilon^3 \vec{F}^{e/n}$$

12.3.3 Développements asymptotiques

Développements de la cinématique

On cherche $\vec{u}^{\tilde{n}}$ et $\theta^{\tilde{n}}$ sous la forme :

$$\vec{u}^{\tilde{n}} = \vec{u}^{n(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right) + \epsilon \vec{u}^{n(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right) + \epsilon^2 \vec{u}^{n(2)}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right) + \cdots \tag{12.14a}$$
$$\vec{\theta}^{\tilde{n}} = \vec{\theta}^{n(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right) + \epsilon \vec{\theta}^{n(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right) + \epsilon^2 \vec{\theta}^{n(2)}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right) + \cdots \tag{12.14b}$$

Pour une interaction $\tilde{a}$, on a :

$$\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})} = \vec{u}^{E(a)(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\right) + \epsilon \vec{u}^{E(a)(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\right) + \cdots$$

soit en développant par Taylor $\vec{u}^{E(a)(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\right)$ et $\vec{u}^{E(a)(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\right)$ au point $\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}$:

$$\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})} = \vec{u}^{E(a)(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \epsilon\left(\vec{u}^{E(a)(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \nabla_x \vec{u}^{E(a)(0)} @ \left(\vec{x}^{\tilde{E}(\tilde{a})} - \vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)\right) + \cdots$$

soit enfin d'après (12.12) :

$$\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})} = \vec{u}^{E(a)(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \epsilon\left(\vec{u}^{E(a)(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \nabla_x \vec{u}^{E(a)(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) + \cdots$$

De même on a :

$$\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{a})} = \vec{\theta}^{E(a)(0)}\left(\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \epsilon\left(\vec{\theta}^{E(a)(1)}\left(\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \nabla_x \vec{\theta}^{E(a)(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) + \cdots$$

et on a donc pour l'interaction $\tilde{a}$:

$$\forall \tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right),\ \vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})} - \vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{a})} = \vec{u}^{E(a)(0)} - \vec{u}^{O(a)(0)} + \epsilon\left(\vec{u}^{E(a)(1)} - \vec{u}^{O(a)(1)} + \nabla_x \vec{u}^{E(a)(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) + \cdots \tag{12.15a}$$

$$\vec{\theta}^{\tilde{E}(\tilde{a})} - \vec{\theta}^{\tilde{O}(\tilde{a})} = \vec{\theta}^{E(a)(0)} - \vec{\theta}^{O(a)(0)} + \epsilon\left(\vec{\theta}^{E(a)(1)} - \vec{\theta}^{O(a)(1)} + \nabla_x \vec{\theta}^{E(a)(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) + \cdots \tag{12.15b}$$

$$l^{\tilde{a}}\vec{\tau}^{\tilde{a}} \wedge \vec{\theta}_t^{\tilde{E}(\tilde{a})} = \epsilon \ell^a \vec{\tau}^a \wedge \vec{\theta}^{E(a)(0)} + \cdots \tag{12.15c}$$

où les différentes fonctions $\vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{a})}$, $\vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})}\ldots$ sont évaluées en $\vec{x}^{\tilde{O}(\tilde{a})}$.

Développement des efforts d'interaction

Compte tenu des développements de la cinématique du paragraphe 12.3.3, ceux des lois de comportement (12.4) des segments de poutre et des contacts donnent :

$$\vec{T}^{\tilde{a}} = \epsilon^2\left(\epsilon^{-1}\vec{T}^{a(-1)} + \vec{T}^{a(0)} + \epsilon\vec{T}^{a(1)} + \cdots\right) \tag{12.16a}$$

$$\vec{M}^{O\tilde{a}} = \epsilon^3\left(\epsilon^{-1}\vec{M}^{Oa(-1)} + \vec{M}^{Oa(0)} + \epsilon\vec{M}^{Oa(1)} + \cdots\right) \tag{12.16b}$$

$$\vec{M}^{E\tilde{a}} = \epsilon^3\left(\epsilon^{-1}\vec{M}^{Ea(-1)} + \vec{M}^{Ea(0)} + \epsilon\vec{M}^{Ea(1)} + \cdots\right) \tag{12.16c}$$

où compte tenu de (12.13), de (12.1) et de (12.12) :

$$\vec{T}^{a(-1)} = H^c_{TU} @ \left(\vec{u}^{E(a)(0)} - \vec{u}^{O(a)(0)}\right) \tag{12.17a}$$

$$\vec{M}^{Oa(-1)} = H^a_{MU} @ \left(\vec{u}^{E(a)(0)} - \vec{u}^{(0O(a)(0)}\right) \tag{12.17b}$$

$$\vec{M}^{Ea(-1)} = \vec{M}^{Oa(-1)} - \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \wedge \vec{T}^{a(-1)} \tag{12.17c}$$

Développement des équations d'équilibre

On développe les équations d'équilibre en prenant des vitesses virtuelles de forme particulière dans la formulation en puissances virtuelles (12.10) dans laquelle les sommes $\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}$ et $\sum_{\tilde{n}\in\tilde{\mathscr{N}}}$ ont été scindées en $\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}} = \sum_{\underline{\nu}}\sum_{a\in\mathscr{A}}$ et $\sum_{\tilde{n}\in\tilde{\mathscr{N}}} = \sum_{\underline{\nu}}\sum_{n\in\mathscr{N}}$ et en assimilant, pour ϵ très petit, les sommes $\epsilon^d V\sum_{\underline{\nu}}\bullet$ à des sommes de Riemann d'intégrales $\int_\Omega \bullet \mathrm{d}\nu_x$ [3] où d est la dimension du problème et V le «volume» de la cellule élémentaire (à 3 dimensions on a $V = \det\left(\vec{Y}_1, \vec{Y}_2, \vec{Y}_3\right)$ et à 2 dimensions $V = \left\|\vec{Y}_1 \wedge \vec{Y}_2\right\|$).

Pour obtenir les équations d'équilibre satisfaites par les $\vec{T}^{a(-1),}$ on considère (12.10) pour des rotations virtuelles $\vec{\omega}^{\tilde{n}}$ des nœuds nulles et des vitesses virtuelles $\vec{v}^{\tilde{n}}$ de la forme $\vec{v}^{\tilde{n}} = \phi(\vec{x}^\epsilon)\,\vec{v}^n$, $\tilde{n} = \left(\underline{\nu}, n\right)$ où $\phi(\vec{x})$ est une fonction définie sur Ω s'annulant sur $\partial\Omega$ et où $\vec{x}^\epsilon = \epsilon\nu^i\vec{Y}_i$.

Il vient :

$$\forall \phi, \vec{v}^n, \sum_{\underline{\nu}} \epsilon \phi\left(\vec{x}^{\epsilon}\right) \sum_{a \in \mathscr{A}} \vec{T}^{a(-1)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)}\right) = 0$$

Ce qui, après multiplication par $\epsilon^2 V$, donne à la limite $\epsilon \searrow 0$:

$$\forall \phi, \vec{v}^n, \int_{\Omega} \phi(\vec{x}) \left(\sum_{a \in \mathscr{A}} \vec{T}^{a(-1)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)}\right) \right) \mathrm{d}\nu_x = 0$$

Comme ϕ est quelconque, cela entraîne :

$$\forall \vec{v}^n, \sum_{a \in \mathscr{A}} \vec{T}^{a(-1)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)}\right) = 0 \tag{12.18}$$

12.3.4 Problème en $\vec{u}^{(0)n}$

En combinant la formulation en puissances virtuelles (12.18) et des lois de comportement (12.17a), on obtient le formulation faible du problème dont les $\vec{u}^{n(0)}$ sont solution qui s'écrit :

Trouver $\vec{u}^{n(0)}, n \in \mathscr{N}$ et $\vec{T}^{a(-1)}, a \in \mathscr{A}$ tels que :
$\forall \vec{v}^n, \sum_{a \in \mathscr{A}} \vec{T}^{a(-1)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)}\right) = 0$
$\vec{T}^{a(-1)} = H^a_{TU^@} \left(\vec{u}^{E(a)(0)} - \vec{u}^{O(a)(0)}\right)$

Comme les $\vec{u}^{n(0)}$ n'interviennent que par des différences, il est évident que la solution de ce problème n'est déterminée qu'à un déplacement constant près. Sauf cas particulier, à tester dans les applications, les déplacements constants sont les seules solutions, on note donc :

$$\forall n \in \mathscr{N}, \vec{u}^{n(0)} = \vec{u}^{(0)} \tag{12.19}$$

Ce qui montre qu'au premier ordre, le champ de déplacement ne dépend pas du nœud considéré. Par contre ce problème ne dit rien sur les $\vec{\theta}^{n(0)}$.

Des équations (12.17) on déduit que :

$$\vec{T}^{a(-1)} = 0$$
$$\vec{M}^{a(-1)} = 0$$

et les développements (12.15) devient :

$$\forall \tilde{a} = \left(\underline{\nu}, a\right),\ \vec{u}^{\tilde{E}(\tilde{a})} - \vec{u}^{\tilde{O}(\tilde{a})} = \epsilon\left(\vec{u}^{E(a)(1)} - \vec{u}^{O(a)(1)} + \nabla_x \vec{u}^{(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) + \cdots \tag{12.20}$$

12.3.5 Ordre suivant

Développements des efforts d'interaction

On poursuit l'exploitation des développements asymptotiques du paragraphe 12.3.3. Compte tenu des résultats du paragraphe 12.3.4, les développements (12.16) des forces et moments des interactions deviennent :

$$\vec{T}^{\tilde{a}} = \epsilon^2\left(\vec{T}^{a(0)} + \epsilon\vec{T}^{a(1)} + \cdots\right) \tag{12.21a}$$

$$\vec{M}^{O\tilde{a}} = \epsilon^3\left(\vec{M}^{Oa(0)} + \epsilon\vec{M}^{Oa(1)} + \cdots\right) \tag{12.21b}$$

$$\vec{M}^{E\tilde{a}} = \epsilon^2\left(\vec{M}^{Ea(0)} + \epsilon\vec{M}^{Ea(1)} + \cdots\right) \tag{12.21c}$$

où, d'après les développements (12.20) et (12.14) du paragraphe 12.3.3 et les lois de comportement (12.4), on a :

$$\begin{aligned}\vec{T}^{a(0)} = {} & H^a_{TU} @ \left(\vec{u}^{E(a)(1)} - \vec{u}^{O(a)(1)} + \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \wedge \vec{\theta}^{E(a)(0)} + \nabla_x \vec{u}^{(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) \\ & + H^a_{T\theta} @ \left(\vec{\theta}^{E(c)(0)} - \vec{\theta}^{O(c)(0)}\right)\end{aligned} \tag{12.22a}$$

$$\begin{aligned}\vec{M}^{Oa(0)} = {} & H^a_{MU} @ \left(\vec{u}^{E(a)(1)} - \vec{u}^{O(a)(1)} + \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \wedge \vec{\theta}^{E(a)(0)} + \nabla_x \vec{u}^{(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) \\ & + H^a_{M\theta} @ \left(\vec{\theta}^{E(a)(0)} - \vec{\theta}^{O(a)(0)}\right)\end{aligned} \tag{12.22b}$$

$$\vec{M}^{Ea(0)} = \vec{M}^{Oa(0)} - \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \wedge \vec{T}^{a(0)} \tag{12.22c}$$

Développement des équations d'équilibre

On applique la même méthode qu'au paragraphe 12.3.3. On prend dans la formulation (12.10) des vitesses virtuelles $\vec{v}^{\tilde{n}}$ et des rotations virtuelles $\vec{\omega}^{\tilde{n}}$ des nœuds de la forme $\vec{v}^{\tilde{n}} = \phi\left(\vec{x}^{\epsilon}\right)\vec{v}^n$ et $\vec{\omega}^{\tilde{n}} = \phi\left(\vec{x}^{\epsilon}\right)\vec{\omega}^n$ pour $\tilde{n} = \left(\underline{\nu}, n\right)$ où $\phi\left(\vec{x}\right)$ est une fonction définie sur Ω s'annulant sur $\partial\Omega$ et où $\vec{x}^{\epsilon} = \epsilon\nu^i\vec{Y}_i$.

Il vient :

$$\forall \phi, \vec{v}^n, \vec{\omega}^n, -\sum_{\tilde{a}\in\tilde{\mathscr{A}}}\left(\vec{T}^{\tilde{a}}.\left(\vec{v}^{\tilde{E}(\tilde{a})} - \vec{v}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right) + \left(\vec{M}^{E\tilde{a}}.\vec{\omega}^{\tilde{E}(\tilde{a})} - \vec{M}^{O\tilde{a}}\vec{\omega}^{\tilde{O}(\tilde{a})}\right)\right) = 0$$

$$\forall \phi, \vec{v}^n, \vec{\omega}^n, \sum_{\underline{\nu}}\epsilon^2\phi\left(\vec{x}^{\epsilon}\right)\sum_{a\in\mathscr{A}}\left(\vec{T}^{a(0)}.\left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)}\right) + \left(\vec{M}^{Ea(0)}.\vec{\omega}^{E(a)} - \vec{M}^{Oa(0)}\vec{\omega}^{O(a)}\right)\right) = 0$$

Ce qui, après multiplication par ϵV, donne à la limite $\epsilon \searrow 0$:

$$\forall \phi, \vec{v}^n, \vec{\omega}^n, \int_\Omega \phi(\vec{x}) \left(\sum_{a \in \mathscr{A}} \left(\vec{T}^{a(0)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)} \right) + \left(\vec{M}^{Ea(0)} . \vec{\omega}^{E(a)} - \vec{M}^{Oa(0)} \vec{\omega}^{O(a)} \right) \right) \right) \mathrm{d}v_x = 0$$

Comme ϕ est quelconque, cela entraîne :

$$\forall \vec{v}^n, \vec{\omega}^n, \sum_{a \in \mathscr{A}} \left(\vec{T}^{a(0)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)} \right) + \left(\vec{M}^{Ea(0)} . \vec{\omega}^{E(a)} - \vec{M}^{Oa(0)} \vec{\omega}^{O(a)} \right) \right) = 0 \tag{12.23}$$

Problème en $\vec{u}^{(1)n}$ et $\vec{\theta}^{(0)n}$

En procédant comme au paragraphe 12.3.4, on obtient le problème en $\vec{u}^{(1)n}$ et $\vec{\theta}^{(0)n}$ qui se formule :

Étant donné $\nabla_x \vec{u}^{(0)}$ (12.24)

trouver $\vec{u}^{(1)n}, \vec{\theta}^{(0)n}$, $n \in \mathscr{N}$, et $\vec{T}^{a(0)}, \vec{M}^{a(0)}$, $a \in \mathscr{A}$ tels que :

$$\forall \vec{v}^n, \vec{\omega}^n, \sum_{a \in \mathscr{A}} \left(\vec{T}^{a(0)} . \left(\vec{v}^{E(a)} - \vec{v}^{O(a)} \right) + \left(\vec{M}^{Ea(0)} . \vec{\omega}^{E(a)} - \vec{M}^{Oa(0)} \vec{\omega}^{O(a)} \right) \right) = 0$$

$$\begin{aligned}
\vec{T}^{a(0)} &= H^a_{TU} @ \left(\vec{u}^{E(a)(1)} - \vec{u}^{O(a)(1)} + \left(\vec{B}^a + \delta^{ai} \vec{Y}_i \right) \wedge \vec{\theta}^{E(a)(0)} + \nabla_x \vec{u}^{(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai} \vec{Y}_i \right) \right) \\
&\quad + H^a_{T\theta} @ \left(\vec{\theta}^{E(c)(0)} - \vec{\theta}^{O(c)(0)} \right) \\
\vec{M}^{Oa(0)} &= H^a_{MU} @ \left(\vec{u}^{E(a)(1)} - \vec{u}^{O(a)(1)} + \left(\vec{B}^a + \delta^{ai} \vec{Y}_i \right) \wedge \vec{\theta}^{E(a)(0)} + \nabla_x \vec{u}^{(0)} @ \left(\vec{B}^a + \delta^{ai} \vec{Y}_i \right) \right) \\
&\quad + H^a_{M\theta} @ \left(\vec{\theta}^{E(a)(0)} - \vec{\theta}^{O(a)(0)} \right) \\
\vec{M}^{Ea(0)} &= \vec{M}^{Oa(0)} - \left(\vec{B}^a + \delta^{ai} \vec{Y}_i \right) \wedge \vec{T}^{a(0)}
\end{aligned}$$

Il s'agit du problème d'auto-équilibre de la cellule. Les champs ainsi calculés vont permettre d'estimer quantitativement les coefficients effectifs de la loi de comportement macroscopique.

12.3.6 Modèle macroscopique et contraintes équivalentes

Contraintes macroscopiques équivalentes

On prend $\vec{v}^{\tilde{n}} = \vec{v}\left(\vec{x}^{\tilde{n}}\right)$, avec $\tilde{n} = \left(\underline{\nu}, n\right)$ et $\vec{x}^{\tilde{n}} = \epsilon\left(\nu^i \vec{Y}_i + \vec{x}^n\right)$ dans la formulation (12.8) qu'on réécrit :

$$\forall \vec{v}, -\sum_{\underline{\nu}} \sum_{a\in\mathscr{A}} \vec{T}^{\tilde{a}}.\left(\vec{v}\left(\epsilon\left(\left(\nu^i+\delta^{ai}\right)\vec{Y}_i^i + \vec{x}^{E(a)}\right)\right) - \vec{v}\left(\epsilon\left(\nu^i\vec{Y}_i^i + \vec{x}^{O(n)}\right)\right)\right) + \sum_{\underline{\nu}}\left(\sum_{n\in\mathscr{N}} \vec{F}^{e/\tilde{n}}\right)\cdot\vec{v} = 0$$

On développe $\vec{v}\left(\epsilon\left(\left(\nu^i+\delta^{ai}\right)\vec{Y}_i^i + \vec{x}^{E(a)}\right)\right) - \vec{v}\left(\epsilon\left(\nu^i\vec{Y}_i^i + \vec{x}^{O(n)}\right)\right)$ en :

$$\vec{v}\left(\epsilon\left(\left(\nu^i+\delta^{ai}\right)\vec{Y}_i^i + \vec{x}^{E(a)}\right)\right) - \vec{v}\left(\epsilon\left(\nu^i\vec{Y}_i^i + \vec{x}^{O(n)}\right)\right) = \epsilon\nabla_x\vec{v}@\left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) + \cdots$$

et en tenant compte de (12.21a) , on obtient :

$$\forall \vec{v}^n, -\epsilon^3\sum_{\underline{\nu}}\left(\sum_{a\in\mathscr{A}}\vec{T}^{a(0)}\right).\left(\nabla_x\vec{v}@\left(\vec{B}^a+\delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) + \epsilon^3\sum_{\underline{\nu}}\left(\sum_{n\in\mathscr{N}}\vec{F}^{e/n}\right)\cdot\vec{v} + \cdots = 0$$

ce qui donne à l'ordre le plus bas en ϵ :

$$\forall \vec{v}, -\int_\Omega\left(\frac{1}{V}\sum_{a\in\mathscr{A}}\vec{T}^{a(0)}\otimes\left(\vec{B}^a+\delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right) : \nabla_x\vec{v}\,\mathrm{d}\nu_x + \int_\Omega\left(\frac{1}{V}\sum_{n\in\mathscr{N}}\vec{F}^{e/n}\right).\vec{v}\,\mathrm{d}\nu_x = 0$$

En posant :

$$\sigma = \frac{1}{V}\sum_{a\in\mathscr{A}}\vec{T}^{a(0)}\otimes\left(\vec{B}^a+\delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \tag{12.25}$$

$$\vec{f}^e = \frac{1}{V}\sum_{n\in\mathscr{N}}\vec{F}^{e/n} \tag{12.26}$$

on obtient la formulation en puissances virtuelles de l'équilibre macroscopique qui s'écrit :

$$\forall \vec{v}, -\int_\Omega \sigma : \nabla_x\vec{v}\,\mathrm{d}\nu_x + \int_\Omega \vec{f}^e.\vec{v}\,\mathrm{d}\nu_x = 0 \tag{12.27}$$

Loi de comportement macroscopique

La loi de comportement macroscopique est fournie par la résolution du problème d'auto-équilibre de la cellule (12.24) et l'expression (12.25) du tenseur des contraintes macroscopiques. En effet la résolution du problème (12.24) donne les $\vec{u}^{n(1)}$, les $\vec{\theta}^{n(0)}$ et par conséquent les forces $\vec{T}^{a(0)}, a\in\mathscr{A}$ en fonction de la donnée du problème (12.24) qui est le gradient macro-

scopique $\nabla_x \vec{u}^{(0)}$ du champ de déplacement macroscopique $\vec{u}^{(0)}$. Le report de $\vec{T}^{a(0)}$ dans l'expression (12.25) des contraintes macroscopiques donne σ en fonction de $\nabla_x \vec{u}^{(0)}$, ce qui est la loi de comportement macroscopique.

Le problème (12.24) et l'expression (12.25) étant linéaire la loi de comportement macroscopique est linéaire.

12.3.7 Compléments sur le modèle macroscopique

Expression des contraintes macroscopiques

En prenant $\vec{\omega}^n = 0$ et $\vec{v}^n = A@\vec{w}^n$ où A est une application linéaire, dans l'équation d'équilibre (12.23), on obtient

$$\forall A, \vec{w}^n, \sum_{a\in\mathscr{A}} \vec{T}^{a(0)}.\left(A@\left(\vec{w}^{E(a)} - \vec{w}^{O(a)}\right)\right) = 0$$

c'est-à-dire :

$$\forall A, \vec{w}^n, \left(\sum_{a\in\mathscr{A}} \vec{T}^{a(0)} \otimes \left(\vec{w}^{E(a)} - \vec{w}^{O(a)}\right)\right) : A = 0$$

A étant quelconque, on en déduit :

$$\forall \vec{w}^n, \sum_{a\in\mathscr{A}} \vec{T}^{a(0)} \otimes \left(\vec{w}^{E(a)} - \vec{w}^{O(a)}\right) = 0$$

Pour $\vec{w}^n = \vec{x}^n$, cela donne compte tenu de (12.11) :

$$\sum_{a\in\mathscr{A}} \vec{T}^{a(0)} \otimes \vec{B}^a = 0$$

En reportant dans (12.25) on obtient :

$$\sigma = \frac{1}{V}\left(\sum_{a\in\mathscr{A}} \vec{T}^{a(0)} \delta^{ai}\right) \otimes \vec{Y}_i \tag{12.28}$$

Symétrie du tenseur des contraintes macroscopiques

En prenant $\vec{v}^n = 0$ et $\forall n \in \mathscr{N}$, $\vec{\omega}^n = \vec{\omega}$ dans l'équation d'équilibre (12.23), on obtient :

$$\forall \vec{\omega}, \left(\sum_{a\in\mathscr{A}} \left(\vec{M}^{Ea(0)} - \vec{M}^{Oa(0)}\right)\right).\vec{\omega} = 0$$

soit comme $\vec{\omega}$ est quelconque :

$$\sum_{a\in\mathscr{A}} \left(\vec{M}^{Ea(0)} - \vec{M}^{Oa(0)}\right) = 0$$

Compte tenu de (12.1), de (12.11) et de (12.21), la relation précédente donne :

$$\sum_{a\in\mathscr{A}} \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \wedge \vec{T}^{a(0)} = 0$$

$\left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right) \wedge \vec{T}^{a(0)}$ est le vecteur associé au double de la partie antisymétrique de $\vec{T}^{a(0)} \otimes \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)$ par la relation :

$$\forall \vec{c},\ \left(\vec{a}\wedge\vec{b}\right)\wedge\vec{c} = 2\left(\vec{a}\otimes\vec{b}\right)^A @\vec{c}$$

En effet, en développant le double produit vectoriel, on obtient :

$$\begin{aligned}\forall \vec{c},\ \left(\vec{a}\wedge\vec{b}\right)\wedge\vec{c} &= -\left(\vec{b}.\vec{c}\right)\vec{a} + (\vec{a}.\vec{c})\,\vec{b}\\ &= \left(\vec{b}\otimes\vec{a} - \vec{a}\otimes\vec{b}\right)@\vec{c}\\ &= 2\left(\vec{a}\otimes\vec{b}\right)^A @\vec{c}\end{aligned}$$

Il vient donc :

$$\sum_{a\in\mathscr{A}} \left(\vec{T}^{a(0)} \otimes \left(\vec{B}^a + \delta^{ai}\vec{Y}_i\right)\right)^A = 0$$

Ce qui montre que le tenseur des contraintes macroscopiques défini par (12.25) ou (12.28) est symétrique. Ainsi, on peut également remarquer que la forme faible des équations d'équilibre (12.27) est celle d'un milieu continu équivalent de Cauchy élastique et linéaire.

12.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons voulu enrichir la description micromécanique des réseaux de fibres de papier présentée dans le chapitre précédent, *i.e.* en (i) généralisant au cas 3D le problème précédent (ii) en proposant des formes enrichies de liaisons entre fibres et (iii) en tenant compte de la déformabilité des fibres entre liaisons. Ce problème micromécanique a été introduit dans un processus de changement d'échelles théorique s'appuyant sur le méthode d'homogénéisation des structures périodiques discrètes. En fixant arbitrairement les paramètres microstructuraux et micromécaniques, nous avons alors pu montrer que (i) il existait un continu équivalent, (ii) de type milieu de Cauchy , (iii) élastique linéaire. Par manque de temps, nous n'avons pas pu entreprendre des travaux numériques et analytiques tels que

ceux présentés dans le chapitre précédent, pour donner quantitativement des estimations des propriétés élastiques macroscopiques des réseaux considérés :

- ce travail nécessiterait de détérminer quantitativement, en amont, les lois locales de contacts entre fibres (12.3). un moyen d'y parvenir serait par exemple de réaliser des essais mécaniques [2]. Un autre moyen serait d'avoir recours à de la simulation numérique locale [5].

- il faudrait ensuite résoudre , numériquement ou analytiquement, le problème d'auto-équilibre (12.24) sur des cellules représentatives. Dans le premier cas, il faudrait modifier, par exemple, le code éléments discrets utilisé au chapitre précédent.

Bibliographie

[1] C. Boutin and S. Hans. Homogenisation of periodic discrete medium: Application to dynamics framed structures. *Computers and Geotechnics*, 30:303–320, 2003.

[2] O. Guiraud, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, Microstructure and deformation micro-mechanisms of concentrated fiber bundle suspensions: an analysis combining X-ray microtomography and pull-out tests, submitted in J. Rheol., 2012.

[3] G. Moreau and D. Caillerie. Continuum modeling of lattice structures in large displacement framework. *Developments in computational techniques for structural engineering*, 20:53–70, 1995.

[4] F. Pradel. *Homogénéisation Des Milieux Continus et Discrets Périodiques Orientés. Une Application Aux Mousses*. PhD thesis, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Paris, France, 1998.

[5] J. P. Vassal , L. Orgéas, J. L. Auriault, S. Le Corre, Upscaling the diffusion equations in particulate media made by highly conductive particles. Part II: Application to the fibrous materials, Phys. Rev. 77, 011303 (2008).

Partie VI

Conclusion générale et perspectives

Chapitre 13

Conclusion générale et perspectives

L'objectif de ce travail était d'apporter une meilleure compréhension des liens entre les conditions d'élaboration des papiers, leurs propriétés microstructurales et le comportement hygromécanique des réseaux de fibres naturelles enchevêtrées que forment les papiers. Pour y parvenir, nous avons opté pour une méthodologie résolument multi-échelles mêlant à la fois techniques expérimentales appropriées, comme la microtomographie à rayons X, et techniques de changement d'échelles rigoureuses pour analyser par exemple les images tridimensionnelles ou pour étudier le comportement macroscopique des papiers au regard de leur microstructure et de leur micromécanique.

Le premier volet de ce travail a été expérimental. Il s'est appuyé notamment sur l'utilisation de papiers modèles élaborés à façon.

Les papiers modèles ont ainsi été fabriqués à partir de fibres papetières de résineux non raffinées et classées afin d'homogénéiser les caractéristiques morphologiques 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. 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. Ces papiers ont d'abord fait l'objet d'une campagne de caractérisation, aux moyens d'outils de caractérisation classiques mais dédiés aux matériaux fibreux biosourcés, de leurs propriétés mécaniques et hygroexpansives à l'échelle «macroscopique» :

- Il a été notamment observé que les conditions de pressage ont une forte influence sur la porosité apparente des feuilles et l'orientation dans le plan des fibres.

- L'augmentation de leur masse volumique, à partir d'un seuil sous lequel les fibres ne forment plus un réseau suffisamment interconnecté, a un effet prépondérant sur l'augmentation de leur module de Young et de leur contrainte à la rupture.
- Le module de Young et les propriétés d'hygroexpansion des papiers sont fortement anisotropes en lien avec l'orientation des fibres.
- L'augmentation de la teneur en eau des papiers provoque la diminution du module de Young, diminution d'autant plus marquée que la fraction volumique de fibres est forte.
- Il a été observé la faible dépendance des propriétés hygroexpansives des papiers avec leur densité.

Ce sont des comportements typiques observés pour de nombreuses sortes de papiers. Cela valide le choix des papiers que nous avons élaborés comme matériaux modèles. Toutefois, nous n'avons pas observé une forte influence des différents types de conditions de séchage utilisées sur ces propriétés. L'utilisation de fibres non raffinées peut en partie expliquer cette faible influence.

Apports expérimentaux notables...

Les principaux apports expérimentaux de ce travail sont sans aucun doute liés à l'analyse d'images tridimensionnelles de papiers modèles acquises par microtomographie à rayons X. Ces images ont été utilisées d'une part pour déterminer les dimensions des VER pour des propriétés microstructurales comme la fraction volumique de fibres et pour les propriétés élastiques des réseaux fibreux que forment les papiers, c'est-à-dire définir une échelle mésoscopique pertinente de ces matériaux. D'autre part elles ont été utilisées pour quantifier, à l'échelle microscopique, des descripteurs des propriétés morphologiques des fibres et des liaisons.

Dans la ligne initiée par les précédents travaux de thèse menés au sein des laboratoires LGP2 et 3SR sur les propriétés microstructurales de divers papiers, nous avons utilisé des volumes extraits de ces images pour déterminer les dimensions des VER «statistiques» pour la propriété microstructurale fraction volumique de fibres pour un nombre de réalisations, c'est-à-dire un nombre de sous-volumes extraits, et une précision relative données. Nous avons pu confirmer que les dimensions des Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) pour cette propriété microstructurale peuvent être définies en fonction des longueurs de covariance de la phase fibre de ces réseaux, longueurs qui dépendent elles-mêmes des conditions d'élaboration des papiers.
Une des suites que notre travail apporte à ces précédentes études concerne la détermination des dimensions des VER statistiques pour les propriétés élastiques des réseaux fibreux con-

sidérés. Pour cela des simulations numériques s'appuyant sur des images segmentées ont été réalisées au moyen d'un code de type volumes finis pour le calcul de leurs propriétés élastiques. En particulier, il a pu être montré que l'obtention d'une précision raisonnable (erreur relative de 10% pour 3 réalisations) sur la prévision des propriétés élastiques effectives nécessite que les dimensions des VER dans le plan des papiers soient de l'ordre de la longueur moyenne des fibres formant les réseaux fibreux.

Pour des matériaux comme les papiers, ce type d'images tridimensionnelles n'avait jamais été utilisé jusqu'à cette étude pour quantifier des descripteurs microstructuraux des fibres et des contacts. Ce point constitue probablement l'aspect le plus original de notre travail. La méthode d'analyse employée est essentiellement visuelle et manuelle mais permet d'accéder à un grand nombre de descripteurs des propriétés morphologiques des fibres et des liaisons. Il a ainsi été possible de décrire avec précision la ligne moyenne des fibres, l'inclinaison et la forme de leurs sections droites, le nombre et le degré des liaisons entre fibres ainsi que leur surface et de jauger l'évolution de ces descripteurs en fonction des paramètres de fabrication des papiers. La méthode délivre différents résultats notables :

- Les résultats obtenus sur les propriétés morphologiques des fibres et des liaisons sont en accord avec ceux de la littérature. Cependant l'utilisation des images tridimensionnelles remplace avantageusement l'utilisation jusqu'à présent nécessaire d'un grand nombre de dispositifs ainsi que d'échantillons nécessaires pour récolter le même nombre de données sur ce type de milieux. Il ne semble pas qu'il ait existé jusqu'à présent de méthodes permettant de mesurer sur des échantillons individuels autant de paramètres microstructuraux pour les fibres et les liaisons des papiers, et dans les papiers.
- Les mesures effectuées ont montré le caractère statistique de ces différents descripteurs mesurés. Leurs fonctions de distribution se stabilisent rapidement avec l'augmentation du nombre d'objets traités.
- 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 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.

Cette approche a aussi pu être mise en œuvre pour suivre les déformations d'hygroexpansion de quelques fibres incluses dans des papiers soumis à des variations d'humidité relative. Les

données acquises, originales car «in situ» à l'échelle du réseau fibreux et «in situ» à l'échelle des fibres, ont permis d'établir un lien entre les propriétés hygroexpansives anisotropes des fibres et celles des papiers à l'échelle macroscopique ainsi que de discuter du rôle majeur des liaisons (i) pour le transfert des déformations hygroexpansives anisotropes des fibres à l'ensemble de la structure des réseaux de fibres naturelles, mais aussi, et indirectement, (ii) pour le transfert des efforts élastiques sous charges mécaniques.

Apports théoriques et numériques...
Le deuxième volet de ce travail a été théorique et numérique et s'est appuyé sur la théorie de l'homogénéisation des structures périodiques continus ou discrètes pour modéliser le comportement mécanique de réseaux de fibres enchevêtrées.

- Comme déjà indiqué ci-dessus, nous avons dans un premier temps tenté d'estimer les VER des papiers modèles pour leurs propriétés élastiques à partir d'une résolution continue, par volumes finis du problème de localisation issu de l'homogénéisation. Notons ici que la taille numérique des problèmes à résoudre pour cette approche continue constitue même pour des volumes de tailles relativement modestes une limite importante justifiant pleinement les approches de modélisation discrète développées en parallèle dans ce travail (voir ci-dessous).

- Une modélisation du comportement élastique macroscopique équivalent de ces milieux a ensuite été réalisée en tenant compte d'hypothèses simplifiées s'appuyant très fortement sur les analyses microstructurales précédentes sur le comportement des fibres et de liaisons vues respectivement comme rigides et élastiques. Dans ce cadre, un premier modèle numérique a été proposé sur la base de simulations numériques discrètes, un second, analytique et très compact, a été construit en se basant sur un ensemble d'hypothèses supplémentaires sur les microstructures, touchant plus particulièrement les liaisons, et sur la cinématique des fibres. Les deux modèles montrent l'influence très important 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.

- Le cadre théorique de l'homogénéisation a ensuite été étendu à celui de réseaux de fibres vues comme des poutres linéairement élastiques de Timoshenko et des liaisons élastiques ou rigides. Les développements effectués dans le cadre de ce travail donne la forme des problèmes de localisation qui devront être résolus sur des Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) des microstructures afin d'identifier les coefficients effectifs des lois de comportement du milieu continu macroscopique équivalent ainsi que la forme des modèles de comportement mécanique continus équivalents. La mise en

œuvre numérique ou analytique de ce travail reste à accomplir à l'issue de ce travail.

Quelques perspectives...
Plusieurs travaux pourraient être entrepris afin de répondre aux différents points qui restent en suspens à l'issue de cette étude.

- Les papiers modèles apparaissent comme un bon outil qui permet de reproduire ou de faire varier à façon un ensemble de caractéristiques typiques des papiers dont l'analyse permet d'alimenter une démarche de compréhension et de modélisation mutli-échelles du comportement de ces matériaux. Le façonnage des papiers modèles pourrait cependant être enrichi pour améliorer par exemple la compréhension des phénomènes d'hygroexpansion à l'échelle des fibres et des liaisons mieux que nous avons pu le faire dans cette étude, nous pourrions mettre en œuvre des outils apportant un meilleur contrôle des conditions de maintien de ces papiers au cours de leur séchage, sélectionner des fibres classées non seulement selon leur longueur mais aussi selon leur courbure ainsi que selon l'angle moyen de leurs microfibrilles et faire varier l'orientation des fibres dans une gamme plus large c'est-à-dire choisir un ensemble de paramètres dont les propriétés hygroexpansives des papiers sont a priori fortement tributaires.

- L'extraction des données microstructurales concernant les fibres et les liaisons a été faite de manière visuelle et manuelle à partir des images tridimensionnelles des papiers acquises par microtomographie à rayons X ce qui a permis 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, ce qui a constitué une analyse difficile et fastidieuse. L'acquisition de ces données nous semblent pourtant constituer un apport important dans l'analyse microstructurale et des micromécanismes de déformation des papiers et plus généralement des milieux fibreux. Il paraît donc opportun de poursuivre ce type d'études et pour cela de disposer d'outils d'analyse automatiques permettant

  – d'identifier et de «labelliser» individuellement les fibres et les liaisons qu'elles forment au sein des réseaux fibreux,
  – d'assurer leur suivi individuel au cours de la déformation de ces milieux.

  Des travaux sont actuellement réalisés dans les deux laboratoires de cette thèse pour atteindre cet objectif. Pour l'instant, les logiciels donnent des résultats pertinents pour la labellisation de fibres et de liaisons dans des réseaux de fibres papetières de faible densité. Ces logiciels devraient être testés pour des réseaux de fibres plus denses tels que ceux que nous avons testés dans ce travail.

- La validation des modèles numériques et analytiques de comportement multi-échelles issus du premier cadre de modélisation pourrait être menée à bien en comparant ses prévisions avec des résultats d'essais mécaniques couplés par exemple à des techniques d'observation par analyse d'images pour une observation fine des mécanismes de déformation anisotropes des papiers.
- Le deuxième modèle développé nécessiterait que les développements numériques et analytiques qui ont été effectués pour le premier modèle soient menés à bien pour identifier ses prévisions à l'échelle macroscopique.
- Les modèles développés nécessitent divers paramètres micromécaniques en particulier concernant les lois mécaniques des liaisons entre fibres dont l'élaboration pourrait passer soit par une approche locale expérimentale, soit numérique.
- Améliorer plus avant ces modèles passerait par exemple par la prise en compte des phénomènes complexes d'hygroexpansion des fibres et des liaisons et du couplage des propriétés mécaniques des fibres et des liaisons avec leur teneur en eau, voire des phénomènes de diffusion associés aux variations de cette dernière.

Annexe A

Comportement intégré d'une poutre

Les poutres considérées sont droites et cylindriques, ce qui entraîne que l'aire et l'inertie des sections droites sont constantes le long des poutres.

A.0.1 Description géométrique et mécanique d'une poutre

Géométrie de la poutre

On considère une poutre (ou un segment de poutre) curviligne de longueur ℓ paramétrée par son abscisse curviligne s. La position des points de la poutre est donnée par la fonction placement $\vec{\varphi}$:

$$s \in [0, \ell] \rightarrow \vec{x} = \vec{x}^O + \vec{\varphi}(s) \in V \tag{A.1}$$

où $\vec{x}^O$ est la position de l'origine de la poutre, on note $\vec{x}^E$ la position de l'extrémité de la poutre :

$$\vec{x}^E = \vec{x}^O + \vec{\varphi}(\ell)$$

On note $\vec{\tau}$ le vecteur unitaire tangent orienté dans le sens de la poutre, on a :

$$\vec{\tau} = \mathrm{d}_s \vec{\varphi} \tag{A.2}$$

Dans le cas d'une poutre droite, la fonction placement est égale à :

$$\vec{\varphi}(s) = \vec{x}^O + s\vec{\tau}$$

Equilibre d'une poutre soumise à des actions ponctuelles aux extrémités

La poutre est en équilibre sous l'action d'efforts (forces et moments) ponctuels appliqués aux extrémités de la poutre.

Soient $\vec{T}(s)$ et $\vec{M}(s)$ les tension et moment au point $\vec{x} = \vec{x}^O + \vec{\varphi}(s)$ d'abscisse curviligne s de la poutre.

L'équilibre de la poutre s'écrit :

$$\begin{aligned} \vec{T}(s) - \vec{T}(s') &= 0 \\ \vec{M}(s) + \vec{\varphi}(s) \wedge \vec{T}(s) - \left(\vec{M}(s') + \vec{\varphi}(s') \wedge \vec{T}(s')\right) &= 0 \end{aligned}$$

l'équilibre en moments étant écrit à l'origine de la poutre.

Ce qui montre que le long de la poutre, $\vec{T}$ et $\vec{M} + \vec{\varphi} \wedge \vec{T}$ sont constants.

Dans le cas d'une poutre droite, les équations d'équilibre s'écrivent :

$$\vec{T} = \text{cste} \tag{A.3a}$$

$$\vec{M}(s) + s\vec{\tau} \wedge \vec{T} = \vec{M}^O \tag{A.3b}$$

où $\vec{M}^O$ est le moment $\vec{M}(0)$ à l'origine de la poutre.

Loi de comportement

La poutre est supposée cylindrique, ce qui signifie que les caractéristiques, aire, inertie, ... de la section droite sont constantes le long de la poutre. De plus on suppose que la section droite présente suffisamment de symétries pour que son tenseur d'inertie soit proportionnel à la projection orthogonale sur la section droite.

La tension $\vec{T}$, le moment $\vec{M}$ et le moment $\vec{M}^O$ à l'origine de la poutre sont décomposés en :

$$\begin{aligned}\vec{T} &= T_n\vec{\tau} + \vec{T}_t \text{ avec } \vec{T}_t.\vec{\tau} = 0\\ \vec{M} &= M_n\vec{\tau} + \vec{M}_t \text{ avec } \vec{M}_t.\vec{\tau} = 0\\ \vec{M}^O &= M_n^O\vec{\tau} + \vec{M}_t^O \text{ avec } \vec{M}_t^O.\vec{\tau} = 0\end{aligned}$$

Le déplacement $\vec{u}$ et la rotation $\vec{\theta}$ sont décomposés en :

$$\begin{aligned}\vec{u} &= u_n\vec{\tau} + \vec{u}_t \text{ avec } \vec{u}_t.\vec{\tau} = 0\\ \vec{\theta} &= \theta_n\vec{\tau} + \vec{\theta}_t \text{ avec } \vec{\theta}_t.\vec{\tau} = 0\end{aligned}$$

Les poutres sont supposées élastiques, la loi de comportement en traction longitudinale est :

$$T_n = EA\mathrm{d}_s u_n$$

où E est le module d'Young du matériau et A l'aire de la section droite de la poutre. La loi de comportement pour le moment est :

$$\begin{aligned}M_n &= kG\mathrm{d}_s\theta_n\\ \vec{M}_t &= EI\mathrm{d}_s\vec{\theta}_t\end{aligned}$$

où G est le module en cisaillement du matériau et I est l'inertie de la section droite de la poutre, plus précisément le tenseur d'inertie vaut IP_Π où P_Π est la projection orthogonale sur la section droite. k est un coefficient dépendant de la forme de la section droite de la poutre, dans le cas d'une section circulaire de rayon r, il vaut $\frac{\pi}{2}r^4$ (on peut trouver sa valeur pour d'autres formes dans Timoshenko), de façon générale, il est de l'ordre de la puissance 4 de la dimension de la section droite.

Remarque A.0.1. G est égal à 2μ où μ est le coefficient de Lamé du matériau constituant la poutre. En fonction de E et ν, on a :

$$G = \frac{E}{1-2\nu} \tag{A.4}$$

La modélisation de poutre considérée est celle de Timoshenko des poutres droites. Dans cette modélisation, l'effort tranchant $\vec{T}_t$ est relié à $\mathrm{d}_s\vec{u}_t(s) + \vec{\tau}(s)\wedge\vec{\theta}(s)$ par la loi de comportement :

$$\vec{T}_t = GA\alpha\left(\mathrm{d}_s\vec{u}_t + \vec{\tau}\wedge\vec{\theta}\right)$$

soit aussi :

$$\vec{T}_t = GA\alpha\left(\mathrm{d}_s\vec{u}_t + \vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right)$$

Dans la cas où la section n'est pas simple (pas assez de symétries) α est une application linéaire telle que $\alpha@\vec{\tau} = 0$.

Remarque A.0.2. En notant α^{-1} l'inverse de α du plan Π orthogonal de $\vec{\tau}$ dans lui-même, la loi de Timoshenko précédente s'écrit aussi :

$$\alpha^{-1}@\vec{T}_t = GA\left(\mathrm{d}_s\vec{u}_t + \vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right)$$

Ce qui montre que pour $\alpha^{-1} = 0$ on a $\mathrm{d}_s\vec{u}_t(s) + \vec{\tau}(s)\wedge\vec{\theta}(s) = 0$ et on retrouve le modèle de Navier Bernouilli.

En résumant le comportement de la poutre est donné par :

$$T_n = EA\mathrm{d}_s u_n \tag{A.5a}$$
$$\vec{T}_t = GA\alpha\left(\mathrm{d}_s\vec{u}_t + \vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right) \tag{A.5b}$$
$$M_n = kG\mathrm{d}_s\theta_n \tag{A.5c}$$
$$\vec{M}_t = EI\mathrm{d}_s\vec{\theta}_t \tag{A.5d}$$

Loi de comportement intégrée

La poutre considérée étant droite, le vecteur tangent $\vec{\tau}$ est constant et par conséquent les équations d'équilibre (A.3) s'écrivent aussi :

$$T_n(s) = \text{cste} \tag{A.6a}$$
$$\vec{T}_t(s) = \text{cste} \tag{A.6b}$$
$$M_n(s) = M_n^O \tag{A.6c}$$
$$\vec{M}_t(s) + s\vec{\tau}\wedge\vec{T}_t = \vec{M}_t^O \tag{A.6d}$$

Compte tenu des équations d'équilibre (A.6a) et (A.6c), les équations (A.5a) et (A.6c) s'intègrent sur $[0,\ell]$ en :

$$T_n = \frac{EA}{\ell}[u_n]_0^\ell$$
$$M_n = \frac{kG}{\ell}[\theta_n]_0^\ell$$

soit aussi :

$$M_n = \hat{k} G A \ell e^2 \left[\theta_n\right]_0^\ell$$

où on a posé :

$$\hat{k} = \frac{k}{Ar^2} \tag{A.7}$$

L'inversion des relations de comportement (A.5d) et (A.5b) donne:

$$\mathrm{d}_s \vec{u}_t + \vec{\tau} \wedge \vec{\theta}_t = \frac{1}{GA\alpha} \vec{T}_t \tag{A.8a}$$

$$\mathrm{d}_s \vec{\theta}_t = \frac{1}{EI} \vec{M}_t \tag{A.8b}$$

en multipliant vectoriellement (A.8b) par $s\vec{\tau}$ et en ajoutant le résultat à (A.8a), il vient :

$$\mathrm{d}_s \vec{u}_t + \vec{\tau} \wedge \vec{\theta}_t + s\vec{\tau} \wedge \mathrm{d}_s \vec{\theta}_t = \frac{1}{GA\alpha} \vec{T}_t + \frac{1}{EI} s\vec{\tau} \wedge \vec{M}_t$$

soit :

$$\mathrm{d}_s \left(\vec{u}_t + s\vec{\tau} \wedge \vec{\theta}_t \right) = \frac{1}{GA\alpha} \vec{T}_t + \frac{1}{EI} s\vec{\tau} \wedge \vec{M}_t$$

En tenant compte de l'équation d'équilibre (A.6d), l'équation précédente et (A.8b) deviennent :

$$\mathrm{d}_s \left(\vec{u}_t + s\vec{\tau} \wedge \vec{\theta}_t \right) = \frac{1}{GA\alpha} \vec{T}_t + \frac{1}{EI} s\vec{\tau} \wedge \left(\vec{M}_t^O - s\vec{\tau} \wedge \vec{T}_t \right)$$

$$\mathrm{d}_s \vec{\theta}_t = \frac{1}{EI} \left(\vec{M}_t^O - s\vec{\tau} \wedge \vec{T}_t \right)$$

soit en développant le double produit vectoriel :

$$\mathrm{d}_s \left(\vec{u}_t + s\vec{\tau} \wedge \vec{\theta}_t \right) = \left(\frac{1}{GA\alpha} + \frac{1}{EI} s^2 \right) \vec{T}_t + \frac{1}{EI} s\vec{\tau} \wedge \vec{M}_t^O$$

$$\mathrm{d}_s \vec{\theta}_t = \frac{1}{EI} \left(\vec{M}_t^O - s\vec{\tau} \wedge \vec{T}_t \right)$$

$\vec{\tau}$, $\vec{T}_t$ et $\vec{M}_t^O$ étant constants, ces équation s'intègrent en :

$$\left[\vec{u}_t + s\vec{\tau} \wedge \vec{\theta}_t \right]_0^\ell = \left(\frac{\ell}{GA\alpha} + \frac{\ell^3}{3EI} \right) \vec{T}_t + \frac{\ell^2}{2EI} \vec{\tau} \wedge \vec{M}_t^O \tag{A.9a}$$

$$\left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell = \frac{1}{EI} \left(\ell \vec{M}_t^O - \frac{\ell^2}{2} \vec{\tau} \wedge \vec{T}_t \right) \tag{A.9b}$$

En multipliant vectoriellement (A.9b) par $\frac{\ell}{2}\vec{\tau}$, on obtient :

$$\frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell=\frac{\ell}{2EI}\left(\ell\vec{\tau}\wedge\vec{M}_t^O+\frac{\ell^2}{2}\vec{T}_t\right)$$

dont la soustraction de (A.9a) donne :

$$\left[\vec{u}_t+s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell-\frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell=\left(\frac{\ell}{GA\alpha}+\frac{\ell^3}{3EI}-\frac{\ell^3}{4EI}\right)\vec{T}_t$$

soit :

$$\left[\vec{u}_t+s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell-\frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell=\ell\left(\frac{1}{GA\alpha}+\frac{\ell^2}{12EI}\right)\vec{T}_t$$

soit encore :

$$\left[\vec{u}_t+s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell-\frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell=\frac{\ell^3}{12EI}\left(1+12\frac{EI}{GA\alpha\ell^2}\right)\vec{T}_t \tag{A.10}$$

r étant une longueur caractéristique de la section droite, le rayon par exemple dans le cas d'une section circulaire, A est de l'ordre de r^2 et I de l'ordre de r^4. On pose :

$$\hat{I}=\frac{I}{Ar^2}$$

et on a :

$$\frac{I}{\ell^2}=A\hat{I}e^2$$

où $e=\frac{r}{\ell}$ est l'élancement de la poutre.

L'équation (A.10) s'écrit :

$$\left[\vec{u}_t+s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell-\frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell=\frac{\ell}{12e^2EA\hat{I}}\left(1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}\right)\vec{T}_t$$

soit en inversant :

$$\vec{T}_t=12e^2\frac{EA}{\ell}\hat{I}\frac{1}{1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}}\left(\left[\vec{u}_t+s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell-\frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right)$$

En multipliant vectoriellement cette équation par $\vec{\tau}$, on obtient :

$$\vec{\tau}\wedge\vec{T}_t=12e^2\frac{EA}{\ell}\hat{I}\frac{1}{1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}}\left(\vec{\tau}\wedge\left[\vec{u}_t+s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell+\frac{\ell}{2}\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right)$$

soit, en développant le double produit vectoriel :

$$\vec{\tau} \wedge \vec{T}_t = 12e^2 \frac{EA}{\ell} \hat{I} \frac{1}{1+12e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha}} \left(\left[\vec{\tau} \wedge \vec{u}_t - s\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + \frac{\ell}{2} \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell \right) \tag{A.11}$$

D'après (A.9b) on a :

$$\vec{M}_t^O = \frac{EI}{\ell} \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + \frac{\ell}{2} \vec{\tau} \wedge \vec{T}_t$$

ce qui, compte tenu de la définition de $\hat{I}$ s'écrit :

$$\vec{M}_t^O = EA\hat{I}e^2 \ell \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + \frac{\ell}{2} \vec{\tau} \wedge \vec{T}_t$$

On a donc :

$$\vec{M}_t^O = EA\hat{I}e^2 \ell \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + 6e^2 EA\hat{I} \frac{1}{1+12e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha}} \left(\left[\vec{\tau} \wedge \vec{u}_t - s\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + \frac{\ell}{2} \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell \right)$$

soit en mettant $\frac{1}{1+12e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha}}$ en facteur :

$$\vec{M}_t^O = EAe^2 \hat{I} \frac{1}{1+12e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha}} \left(6 \left[\vec{\tau} \wedge \vec{u}_t - s\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + \ell \left(1 + 12e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha} + 3 \right) \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell \right)$$

soit enfin :

$$\vec{M}_t^O = EAe^2 \hat{I} \frac{1}{1+12e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha}} \left(6 \left[\vec{\tau} \wedge \vec{u}_t - s\vec{\theta}_t \right]_0^\ell + 4\ell \left(1 + 3e^2 \frac{E\hat{I}}{G\alpha} \right) \left[\vec{\theta}_t \right]_0^\ell \right)$$

D'après (A.3b), le moment $\vec{M}^E$ à l'extrémité de la poutre est :

$$\vec{M}^E = \vec{M}(\ell) = \vec{M}^O - \ell \vec{\tau} \wedge \vec{T}$$

ce qui entraîne :

$$M_n^E = M_n^O$$

et :

$$\vec{M}_t^E = EAe^2\hat{I}\frac{1}{1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}}\left(6\left[\vec{\tau}\wedge\vec{u}_t - s\vec{\theta}_t\right]_0^\ell + 4\ell\left(1+3e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}\right)\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right)$$
$$-12e^2EA\hat{I}\frac{1}{1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}}\left(\left[\vec{\tau}\wedge\vec{u}_t - s\vec{\theta}_t\right]_0^\ell + \frac{\ell}{2}\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right)$$

soit ;

$$\vec{M}_t^E = EAe^2\hat{I}\frac{1}{1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}}\left(-6\left[\vec{\tau}\wedge\vec{u}_t - s\vec{\theta}_t\right]_0^\ell + 2\ell\left(-1+6e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}\right)\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right)$$

:

En résumé le comportement intégré ou global de la poutre est donné par les relations :

$$T_n = \frac{EA}{\ell}\left[u_n\right]_0^\ell \tag{A.12a}$$
$$\vec{T}_t = 12\frac{EA}{\ell}e^2\check{I}\left(\left[\vec{u}_t + s\vec{\tau}\wedge\vec{\theta}_t\right]_0^\ell - \frac{\ell}{2}\vec{\tau}\wedge\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right) \tag{A.12b}$$
$$M_n^O = M_n^E = \hat{k}GA\ell e^2\left[\theta_n\right]_0^\ell \tag{A.12c}$$
$$\vec{M}_t^O = EAe^2\check{I}\left(6\left[\vec{\tau}\wedge\vec{u} - s\vec{\theta}_t\right]_0^\ell + \ell\beta\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right) \tag{A.12d}$$
$$\vec{M}_t^E = EAe^2\check{I}\left(-6\left[\vec{\tau}\wedge\vec{u} - s\vec{\theta}_t\right]_0^\ell + \ell\gamma\left[\vec{\theta}_t\right]_0^\ell\right) \tag{A.12e}$$

où on a posé :

$$\check{I} = \frac{\hat{I}}{1+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha}} \tag{A.13}$$
$$\beta = 4+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha} \tag{A.14}$$
$$\gamma = -2+12e^2\frac{E\hat{I}}{G\alpha} \tag{A.15}$$

Remarque A.0.3. Dans le cas des poutres de Navier Bernouilli, on a $\frac{1}{\alpha} = 0$ d'où $\check{I} = \hat{I}$, $\beta = 4$ et $\gamma = -2$.