

Détermination des propriétés microstructurales et physiques d'un matériau fibreux cellulosique à partir de microtomographies aux rayons X.

Maxime Decain^{1,3}, Sabine Rolland du Roscoat^{2,3}, Dominique Bernard⁴, Christian Geindreau¹,
Jean-François Bloch³

¹Laboratoire 3S-R, UJF-INPG-CNRS, BP53X, 38041 Grenoble Cedex 9

²European Synchrotron Radiation Facility (ESRF), BP220, 38 043 Grenoble

³Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers (LGP2), EFGP - INPG, 38000 Grenoble

⁴Institut de Chimie de la Matière Condensée (ICMCB), CNRS, 87, 33608 Pessac.

Résumé :

Cette étude concerne la détermination des propriétés microstructurales et physiques d'un matériau fibreux cellulosique à partir de microtomographies aux rayons X. Les propriétés microstructurales telles que la porosité, la surface spécifique et l'anisotropie du matériau sont mesurées à l'aide d'outils d'analyse d'image. Les propriétés physiques, telles que la perméabilité et la conductivité thermique effective, sont estimées numériquement en s'appuyant sur les résultats de l'homogénéisation périodique. Ces estimations numériques sont comparées à des mesures expérimentales. L'influence de la microstructure sur les propriétés physiques étudiées est discutée.

Abstract :

This study concerns the determination of the microstructural and physical properties of paper material from synchrotron X-ray microtomography. Microstructural properties such as porosity, specific surface area and the anisotropy of material are measured using image analysis tools. Physical properties, such as the permeability and the effective thermal conductivity, are estimated numerically by solving boundary value problem arising from the homogenisation process. These numerical estimates are compared with experimental measurements. The influence of the microstructure on the studied physical properties is discussed.

Mots-clefs :

matériau fibreux ; microstructure ; propriétés physiques

1 Introduction

Le papier est un matériau constitué principalement de fibres de cellulose (feuillus, résineux) avec selon les cas adjonction de charges. Ses propriétés d'usage (effectives) dépendent de sa microstructure telle qu'elle résulte des opérations unitaires de fabrication et des propriétés intrinsèques des matières premières. En raison de la faible épaisseur du papier, les mesures expérimentales des propriétés effectives sont très délicates et se limitent souvent aux propriétés transverses (conductivité thermique, perméabilité) ou dans le plan (élasticité). L'objectif de cette étude est de compléter ces mesures, d'une part en caractérisant la microstructure du papier et d'autre part en évaluant ses propriétés effectives transverses et dans le plan. Afin de caractériser la microstructure, des expériences de microtomographie aux rayons X ont été réalisées à l'ESRF (Roland *et al.*, 2005). Les résultats présentés sont ceux obtenus sur un papier de laboratoire. La section 2 est consacrée aux mesures, à l'aide d'outils d'analyse d'image, des propriétés microstructurales telles que la porosité, la surface spécifique et l'anisotropie du matériau. La section 3 concerne l'estimation des propriétés physiques, telles que la perméabilité et la conductivité thermique. Ces propriétés sont estimées numériquement en s'appuyant sur les résultats de l'homogénéisation périodique. Enfin, ces résultats numériques sont comparés à des

mesures expérimentales.

2 Microstructure

2.1 Matériau et acquisition

Le matériau étudié est un papier de laboratoire constitué uniquement de fibres d'eucalyptus. La longueur des fibres varie de 0,5 à 1 cm alors que leur diamètre est de l'ordre de $20 \mu m$. La figure 1 montre une image 3D de la microstructure du matériau obtenue par microtomographie aux rayons X réalisée à l'ESRF. La taille totale de l'échantillon imagé est de $1400 \mu m \times 1400 \mu m \times e_{max} \mu m$, où $e_{max} = 110 \mu m$ est l'épaisseur totale du papier. La résolution est de $0,7 \mu m/voxel$. On peut observer sur la figure 1 que les fibres sont principalement contenues dans le plan (x, y) et qu'elles sont réparties de manière homogène. Ce constat visuel laisse suggérer que la microstructure est orthotrope.

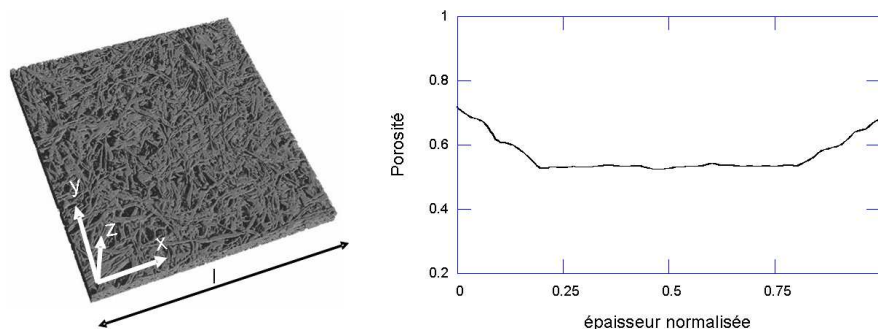


FIG. 1 – Visualisation 3D de l'échantillon étudié ($700 \mu m \times 700 \mu m \times 35 \mu m$) - profil de porosité suivant l'épaisseur de l'échantillon

2.2 Profil de porosité - définition du 'bulk'

Afin d'effectuer des mesures quantitatives des propriétés microstructurales, des outils de traitement d'image ont été spécifiquement développés (Roland *et al.*, 2005). La figure 1 montre le profil de porosité du papier mesuré à partir de l'image binarisée en fonction de son épaisseur normalisée (e/e_{max}). La figure 1 montre que le papier apparaît comme un matériau composite constitué de 3 couches : deux couches très hétérogènes proches des surfaces inférieure et supérieure du papier et d'une partie centrale homogène. Cette couche homogène, qui représente environ 60% de l'épaisseur du papier, est appelée 'bulk'. La porosité moyenne mesurée dans le 'bulk' est de l'ordre de 53%, alors que la porosité moyenne totale du papier est de 57%. Cette dernière est en accord avec celle mesurée expérimentalement, qui est de l'ordre de 60%. Dans la suite, nous limitons notre étude des propriétés microstructurales et physiques à celles du 'bulk'. L'influence des couches avec un fort gradient de porosité sur les propriétés physiques macroscopiques de la feuille de papier sera discutée dans la conclusion.

2.3 Anisotropie de la microstructure

Afin de quantifier l'anisotropie de microstructure observée sur la figure 1, nous avons estimé les covariances $C(s, s + h)$ suivant les trois directions principales x , y et z à partir de sections planes, (x, y) et (x, z) . La figure 2 présente les covariogrammes obtenus. Les cova-

riances présentent un palier asymptotique dont la valeur est égale au carré de la porosité. Le palier est atteint pour une distance h égale à la longueur de covariance L_c , qui caractérise la taille des 'hétérogénéités' du matériau suivant la direction considérée. La figure 2 montre que les covariances suivant les directions x et y sont identiques et que la longueur de covariance correspondante $L_{cx} = L_{cy}$ est de $33\mu\text{m}$, *i.e.* environ 1,5 fois le diamètre des fibres. La longueur de covariance L_{cz} est quant à elle de $2,5\mu\text{m}$. Ces résultats montrent que la microstructure est isotrope transverse. Le degré d'anisotropie de la microstructure définie par le rapport L_{cx}/L_{cz} (ou L_{cy}/L_{cz}) est de l'ordre de 13,2.

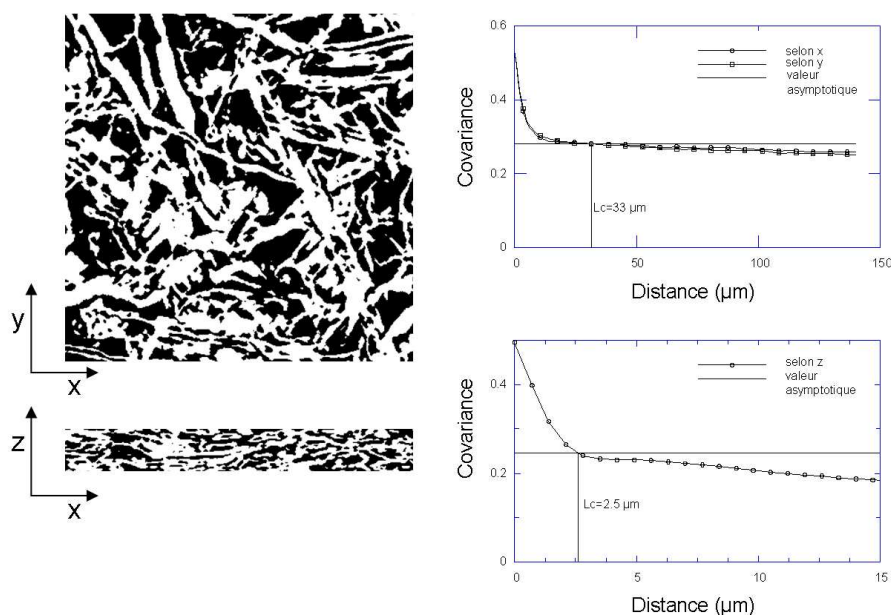


FIG. 2 – Sections planes du matériau et leur covariogramme respectif. Le trait continu représente la valeur asymptotique égale au carré de la porosité.

2.4 Porosité et surface spécifique du 'bulk' - détermination du volume élémentaire représentatif

L'objectif de cette section est de déterminer, d'une part, les propriétés microstructurales du matériau, telles que porosité et surface spécifique, et d'autre part, la taille du volume élémentaire représentatif (VER) de notre matériau pour ces propriétés. Pour déterminer la taille du VER, nous avons mesuré ces deux propriétés sur des volumes de taille croissante centrés sur le même voxel. Les dimensions des volumes considérés sont $l \times l \times h \mu\text{m}^3$, où l est la longueur du coté dans le plan (x, y) et h la hauteur. Etant donnée l'anisotropie de la microstructure, cette étude a été réalisée en deux temps : on s'intéresse tout d'abord à l'influence de l pour $h = 35\mu\text{m}$, puis à l'influence de h lorsque la longueur l est fixée. La figure 3 montre l'évolution de la porosité et de la surface spécifique mesurées en fonction de la dimension l du volume pour $h = 35\mu\text{m}$. La surface spécifique, définie comme le rapport de la surface interstitielle totale sur le volume total, est estimée par mesure stéréologique à l'aide de la relation de Saltikov (Serra, 1982). La figure 3 montre que la porosité et la surface spécifique se stabilisent pour une longueur $l > 400\mu\text{m}$. Par ailleurs, l'étude de l'influence de h pour l fixée a été réalisée. Les résultats, non présentés ici, montrent que la hauteur $h = 35\mu\text{m}$ est aussi suffisante pour obtenir une stabilisation des propriétés mesurées, lorsque $l = 400\mu\text{m}$. Le volume de dimension $(400\mu\text{m} \times 400\mu\text{m} \times 35\mu\text{m})$ peut être considéré comme le VER des deux propriétés étudiées. Notons que ce volume est plus

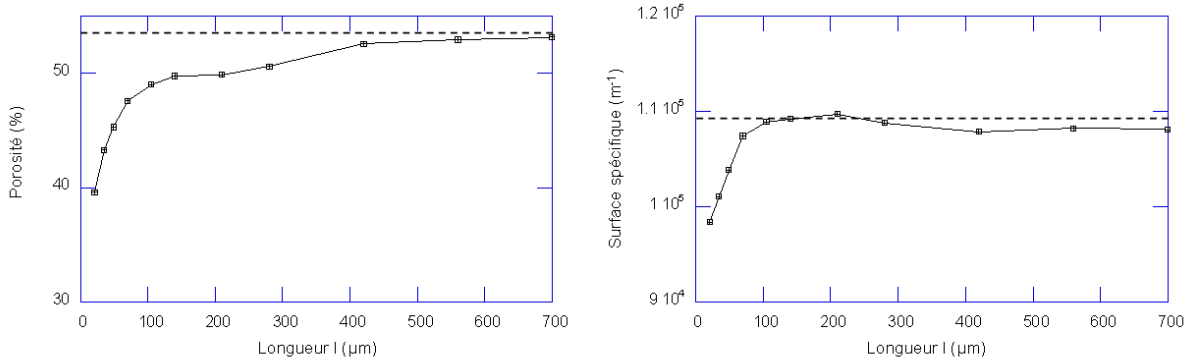


FIG. 3 – Évolution de la porosité et de la surface spécifique en fonction de l ($h = 35\mu\text{m}$). Les traits pointillés représentent les valeurs de porosité et de surface spécifique mesurées sur le volume total du 'bulk' imagé.

petit que le volume total du 'bulk' imagé. Les dimensions de ce VER peuvent être exprimées en fonction des longueurs de covariances mesurées (Drugan et Willis, 1996; Roland *et al.*, 2007). Dans notre cas, le VER correspond à un volume ($12 L_{cx} \times 12 L_{cy} \times 14 L_{cz}$). Ce résultat suggère que la taille du VER peut s'exprimer simplement sous la forme : $N \times (L_{cx} \times L_{cy} \times L_{cz})$, où N caractérise le 'nombre d'hétérogénéités'. Le choix du nombre N dépend de la précision souhaitée. Pour estimer l'erreur sur la propriété mesurée, on considère les valeurs de la porosité et de la surface spécifique mesurées sur le volume total du 'bulk' imagé, soit ($\approx 1000 \times 1000 \times 35 \mu\text{m}^3$), comme valeurs de référence. Si $N = 10$, l'erreur relative sur la porosité et la surface spécifique sont typiquement de 4,3% et 1,3%. Cette erreur diminue si N augmente.

3 Perméabilité et conductivité thermique effective

L'objectif de cette dernière section est, d'une part, de déterminer le tenseur de perméabilité et le tenseur de conductivité thermique effectif de notre matériau et, d'autre part, d'identifier le volume élémentaire représentatif relatif à ces deux propriétés. Pour ce dernier point, la méthodologie présentée dans le 2.4 a été une nouvelle fois mise en oeuvre. La perméabilité a été déterminée numériquement en résolvant sur les différents volumes le problème aux limites suivant donné par l'homogénéisation (Bernard *et al.*, 2005; Auriault, 1991) :

$$\mu \nabla \mathbf{v} - \nabla \tilde{p} - \nabla p = 0, \quad \nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1)$$

où μ est la viscosité, \mathbf{v} est la vitesse du fluide vérifiant la condition d'adhérence à l'interface solide-liquide, \tilde{p} est la fluctuation de la pression, et ∇p le gradient macroscopique de pression imposé. Les inconnues \mathbf{v} et \tilde{p} sont périodiques. Les composantes du tenseur de perméabilité \mathbf{K} sont obtenues en calculant la moyenne du champ de vitesse du fluide $\langle \mathbf{v} \rangle$ et en utilisant la relation de Darcy, $\langle \mathbf{v} \rangle = -(1/\mu) \mathbf{K} \nabla p$. En ce qui concerne le tenseur de conductivité thermique effectif, ses composantes sont obtenues numériquement en résolvant sur les différents volumes le problème aux limites suivant (Auriault et Ene, 1994) :

$$-\nabla \cdot \lambda_i (\nabla \chi_i + \boldsymbol{\delta}) = 0 \quad \text{dans chaque phase } i = \text{air, fibre} \quad (2)$$

$$-\lambda_i (\nabla \chi_i + \boldsymbol{\delta}) \cdot \mathbf{N} = -\lambda_j (\nabla \chi_j + \boldsymbol{\delta}) \cdot \mathbf{N} \quad \chi_i = \chi_j \quad \text{sur l'interface air-fibre} \quad (3)$$

où λ_i est la conductivité thermique, supposée isotrope, de la phase i (= air, fibre), χ_i et χ_j sont deux vecteurs inconnus périodiques. Le tenseur de conductivité thermique effectif est défini

par : $\lambda^{eff} = \langle \lambda_i (\nabla \chi_i + \delta) \rangle$. Le problème aux limites (2-3) a été résolu par la méthode des volumes finis. Les conductivités thermiques de l'air et des fibres sont supposées isotropes et respectivement égales à 0.026 et $0.33 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$. Actuellement, il est difficile d'identifier séparément les fibres de cellulose contenues dans le volume imagé et par conséquent de prendre en compte l'anisotropie des propriétés locales des fibres dans les simulations.

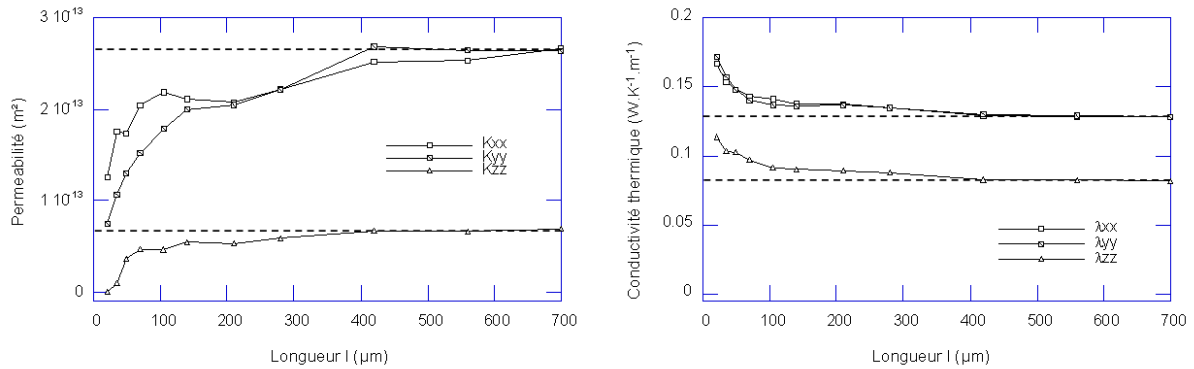


FIG. 4 – Évolution des composantes diagonales du tenseur de perméabilité - Évolution des composantes diagonales du tenseur de conductivité thermique en fonction de l à épaisseur constante = $35\mu\text{m}$. Les valeurs globales sont représentées par les traits pointillés

La figure 4 montre l'évolution des composantes diagonales de \mathbf{K} et de λ^{eff} en fonction de la longueur l , lorsque la hauteur $h = 35\mu\text{m}$. Pour chacune de ces propriétés, les valeurs des composantes hors diagonales sont négligeables devant celles des composantes diagonales et ne sont pas présentées ici. La figure 4 montre que :

- toutes les composantes se stabilisent dès lors que la taille du volume est supérieure à ($400\mu\text{m} \times 400\mu\text{m} \times 35\mu\text{m}$), comme pour la porosité et la surface spécifique. L'étude de l'influence de h pour l fixée a une nouvelle fois montré que la dimension $h = 35\mu\text{m}$ est suffisante pour obtenir les propriétés considérées, lorsque $l = 400\mu\text{m}$. Le volume, i.e. ($12 L_{cx} \times 12 L_{cy} \times 14 L_{cz}$), peut donc être considéré comme le VER de notre matériau pour l'ensemble des propriétés microstructurales et physiques étudiées. Si on considère les valeurs de \mathbf{K} et de λ^{eff} calculées sur le volume total du 'bulk' comme valeurs de référence, il est possible d'estimer l'erreur relative sur les propriétés calculées sur des volumes plus petits. Ces erreurs sont typiquement de l'ordre de $\approx 20\%$ et $\approx 2\%$ pour \mathbf{K} et λ^{eff} pour un volume $10 \times (L_{cx} \times L_{cy} \times L_{cz})$.
- les composantes dans le plan (x, y) de \mathbf{K} et de λ^{eff} sont sensiblement identiques. Les composantes (K_{zz}, λ_{zz}) , sont plus faibles. Ces résultats montrent que les tenseurs \mathbf{K} et λ^{eff} sont isotropes transverses. Le degré d'anisotropie pour chacune de ces propriétés est donné par les rapports K_{xx}/K_{zz} (ou K_{yy}/K_{zz}) et $\lambda_{xx}/\lambda_{zz}$ (ou $\lambda_{yy}/\lambda_{zz}$). Ces rapports sont respectivement égaux à 4 et 1,6 . Ces degrés d'anisotropie sont plus faibles que celui de la microstructure. Le degré d'anisotropie pour λ^{eff} est très faible. Ceci est lié au faible contraste entre les conductivités thermiques des phases air et fibre et au fait que la conductivité thermique des fibres soit supposée isotrope.

4 Conclusions

Afin de caractériser la microstructure du papier, des expériences de microtomographie aux rayons X ont été réalisées à l'ESRF. Les propriétés microstructurales telles que la porosité et la surface spécifique ont tout d'abord été mesurées par analyse d'image. Ces mesures ont per-

mis de mettre en évidence les forts gradients de porosité dans l'épaisseur du papier. Le papier peut-être considéré comme un matériau composite constitué de trois couches : hétérogène - homogène (bulk) - hétérogène. Dans le bulk, l'anisotropie de la microstructure a ensuite été étudiée à l'aide de covariogrammes. Les résultats obtenus montrent que la microstructure du papier étudié est isotrope transverse. Enfin, la perméabilité et la conductivité thermique (transverse et dans le plan) de la zone bulk ont ensuite été estimées numériquement en s'appuyant sur les résultats de l'homogénéisation. Les résultats obtenus montrent que le comportement (perméabilité, conductivité thermique) du matériau est isotrope transverse. Pour l'ensemble des propriétés microstructurales et physiques étudiées, une étude systématique a été mise en oeuvre afin de déterminer la taille du volume élémentaire représentatif. Nous avons montré que les dimensions de ce volume peuvent simplement s'exprimer en fonction des longueurs de covariance, *i.e.* $N \times (L_{cx} \times L_{cy} \times L_{cz})$, où N caractérise le 'nombre d'hétérogénéités'. Le choix du nombre N dépend de la précision souhaitée. Si $N = 10$, l'erreur relative sur la propriété mesurée est de l'ordre de 4,3%, 1,3%, 20% et 2% pour, respectivement, la porosité, la surface spécifique, la perméabilité et la conductivité thermique.

L'une des perspectives concerne la comparaison des propriétés physiques estimées numériquement aux mesures expérimentales. La conductivité thermique transverse a été mesurée expérimentalement en utilisant une méthode flash. La valeur mesurée est de $0.075 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$, alors que celle estimée numériquement dans la zone 'bulk' vaut $0.081 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$. Ces résultats semblent indiquer que les couches hétérogènes de surfaces qui ne sont pas prises en compte dans nos simulations influent peu sur la conductivité thermique effective de la feuille de papier. Des mesures expérimentales de la perméabilité transversale (à l'air) ont aussi été réalisées, suivant des standards papetiers (perméabilité Bendtsen, ISO 5636-3). La perméabilité mesurée expérimentalement est égale à $2 \times 10^{-14} \text{ m}^2$ alors que la valeur estimée numériquement est $6 \times 10^{-14} \text{ m}^2$. Ces différences sont sans doute dues aux couches hétérogènes de surfaces (qui en pratique dépendent du calandrage du papier) qui ne sont pas prises en compte actuellement dans nos simulations.

Références

- Auriault, J.-L., Ene, H. 1994 Macroscopic Modelling of Heat Transfer in Composites with Interfacial Thermal Barrier. *Int. J. Heat Mass Transfer* **37** 2885-2892
- Auriault, J.-L. 1991 Heterogeneous Medium. Is an Equivalent Description Possible? *Int. J. Engng. Sci.* **29** 785-795
- Bernard, D., Nielsen, O., Salvo, L., Cloetens, P. 2005 Permeability Assessment by 3D Interdendritic Flow Simulations on Microtomography Mappings of AL-Cu Alloys. *Materials Science and Engineering A* **392** 112-120
- Drugan, W. J., Willis, J. R. 1996 A Micromechanics-Based Nonlocal Constitutive Equation and Estimates of Representative Volume Element Size for Elastic Composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **44** 497-508
- Rolland du Roscoat, S., Bloch, J.-F., Thibault, X. 2005 Synchrotron Radiation Microtomography Applied to Investigation of Paper. *Journal of Physics D*, **38** A78-A84
- Rolland du Roscoat, S., Decain, M., Thibault, X., Geindreau, C., Bloch, J.-F. 2007 Estimation of microstructural properties from synchrotron X-Ray microtomography and determination of the REV size in paper materials. *Acta Materialia*, **55** 2841-2850.
- Serra, J. 1982 Image analysis and Mathematical Morphology. Academic Press, London.