
Microstructure et propriétés de transport de matériaux isolants à base de fibres cellulosiques

Christine Delisée¹ — Jérôme Malvestio¹ — Jérôme Lux² —
Patrick Castéra¹ — Laurent Chaunier³ — Laurent Chrusciel⁴

¹ Unité Sciences du Bois et des Biopolymères US2B

69 route d'Arcachon, 33612 Cestas cedex

² Laboratoire d'Etudes des Phénomènes de Transfert Appliqués LEPTAB

Avenue Michel Crépeau, 17042 La Rochelle cedex 1

³ Biopolymères Interactions et Assemblages BIA

La Géraudière, BP 71627. 44316 Nantes Cedex 3

⁴ Laboratoire d'Etudes et de Recherche sur le Matériau Bois LERMAB

54506 Vandoeuvre-Lès-Nancy

delisee@us2b.pierroton.inra.fr

RÉSUMÉ. Les matériaux étudiés sont des isolants thermiques à base de fibres de bois utilisés dans le bâtiment, de forte porosité, dont les performances en termes de propriétés thermiques et/ou acoustiques dépendent en partie de leur perméabilité à l'air. Des mesures expérimentales de perméabilité sont réalisées mais s'avèrent délicates à mettre en œuvre sans modification de la microstructure des réseaux fibreux. Nous proposons ainsi une démarche permettant de caractériser la perméabilité de ces isolants à partir de mesures morphologiques et topologiques réalisées sur des images 3D acquises par microtomographie aux rayons X. Les grandeurs mesurées sont introduites dans le modèle de Carman-Kozeny. La démarche est validée par comparaison des valeurs des perméabilités théoriques obtenues par analyse d'images aux valeurs expérimentales.

ABSTRACT. The materials under investigation in this work are insulating products for construction composed of wood fibres randomly arranged and highly porous. Their thermal and sound insulating performances are partially governed by air permeability. Experimental determination of permeability without modification of the fibre network is uneasy. We therefore propose another approach which enables to characterize this property through 3D image analysis using X-ray microtomography. The measured morphological characteristics are introduced into the Carman-Kozeny model, and compared to experimental values in order to validate the approach

MOTS-CLÉS : bois – Carman-Kozeny – fibres – milieu poreux – microstructure – microtomographie rayons X – morphologie – perméabilité.

KEYWORDS: wood – Carman-Kozeny – fibres – microstructure – morphology – permeability – porous media – X-ray microtomography.

1. Introduction

Les matériaux à microstructure fibreuse enchevêtrée couvrent une variété assez large de produits d'usage courant dans le bâtiment : isolants thermiques et/ou acoustiques (laine de verre, de roche, de bois, panneaux de fibres de bois), matériaux de filtration (géotextiles), panneaux d'agencement, avec des propriétés et des domaines d'applications qui dépendent fortement de leur densité. L'utilisation des fibres végétales (bois, cellulose, chanvre) dans l'isolation thermo-acoustique des bâtiments reste très marginale, et relève d'une démarche volontaire de qualité environnementale (label HQE). A titre indicatif, en France, le marché de l'isolation reste largement dominé par la laine de verre (environ 50%), les mousses polystyrène et polyuréthane (30%), et la laine de roche (15%). Sur le plan des performances thermiques, la laine de verre reste supérieure aux autres matériaux, dont notamment les isolants à base de bois. C'est donc par l'innovation que l'on pourra accroître les parts de marché de ces matériaux, et la maîtrise de leur architecture constitue un point d'entrée essentiel, dans la mesure où un grand nombre de propriétés (de transport, mais aussi acoustiques, mécaniques ou optiques) sont en particulier contrôlées par la microstructure.

Les isolants étudiés ici sont des fibreux à structure enchevêtrée, de densité égale à 0,26 et de porosité supérieure à 80%, utilisés en particulier pour l'isolation des toitures, murs et planchers de toutes constructions. Leurs performances thermiques dépendent en partie de leur perméabilité à l'air (Lux *et al*, 2006, Faessel *et al*, 2005), propriété que nous cherchons à mesurer ici, qui est de plus étroitement liée aux paramètres structuraux du réseau des pores. Compte tenu d'une forte porosité et de liaisons faibles entre les fibres, la réalisation de mesures expérimentales de certaines propriétés, dont la perméabilité, s'avère délicate sans modification de la microstructure des réseaux. Ce travail entre dans le cadre d'une action de recherche inter-laboratoires (US2B, BIA, LERMAB), soutenue par le département CEPIA de l'INRA. Les objectifs sont la mise en œuvre et la validation par les 3 laboratoires de dispositifs de mesure de coefficients de perméabilité aux gaz de matériaux très différents, en particulier en termes de densité et morphologie des pores (matériaux fibreux, bois, mousses), et la mise en évidence de relations entre leurs structures et leurs propriétés de transport.

Nous proposons une démarche pour l'évaluation de la perméabilité du matériau à partir de paramètres caractéristiques mesurés sur l'espace des pores. Pour cela, des techniques d'imagerie non destructives, comme la microtomographie par rayons X, permettent de reconstruire la structure tridimensionnelle des différentes phases d'un matériau. Des outils d'analyse d'images issus de la morphologie mathématique (Matheron, 1967, Coster *et al*, 1985), discipline fondée sur la théorie des ensembles, peuvent ensuite être utilisés pour mesurer les caractéristiques géométriques des pores. Ces grandeurs sont introduites dans le modèle de perméabilité de Carman-Kozeny. Les valeurs de perméabilité extraites des images sont comparées à des

valeurs expérimentales obtenues à l'aide d'un perméamètre spécialement adapté pour ce type de matériau de forte porosité.

2. Caractérisation expérimentale

2.1. Matériau

L'étude porte sur un isolant thermique à base de fibres de pin maritime (Thermisorel®) issu d'un procédé de type papetier par voie humide et sans liants. Utilisé pour l'isolation thermique des toitures, murs et planchers de toutes constructions (traditionnelles, maisons bois, HQE), il présente un pouvoir d'amortissement thermique élevé. Les fibres de bois, obtenues par défibrage thermomécanique de copeaux, présentent une forte variabilité en termes de longueur, diamètre ou porosité interne (caractéristique du lumen ou cavité dans laquelle coule la sève lorsque l'arbre est vivant). Il s'agit en grande partie de bûchettes, ou ensemble de fibres individuelles, dont la longueur peut dépasser 10 mm. Les matériaux sont quasi homogènes dans l'épaisseur et les fibres sont orientées dans des plans parallèles aux faces (figure 1). Les panneaux ont pour densité 0,26 et leur porosité, calculée à partir de la densité connue de la paroi de la fibre de bois (1,53 pour toutes les espèces végétales) est de l'ordre de 80%.

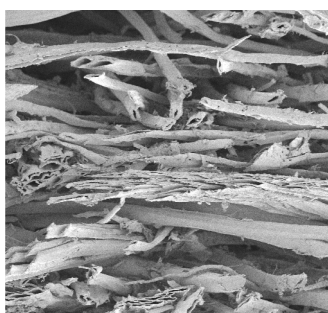


Figure 1. Image MEB : coupe transversale d'un panneau Thermisorel ($1 \times 1 \text{ mm}^2$)

2.2. Mesures de perméabilité

Afin d'obtenir des mesures expérimentales de perméabilité à l'air qui serviront de référence pour valider la démarche, on soumet des échantillons cylindriques de diamètre et hauteur égaux à environ 1cm à une pression différentielle suivant la figure 2. Compte tenu de la forte porosité du matériau et de la fragilité des liaisons inter-fibres, la préparation des échantillons s'avère délicate, aussi bien au niveau de la découpe que de la mise en place dans la cellule de mesure. Après découpe à l'aide

d'un emporte-pièce monté sur une perceuse, les échantillons sont enrobés d'une résine qui, après durcissement, assurera la rigidité longitudinale lors de la mise en étanchéité. La perméabilité expérimentale K_{exp} est alors calculée, pour des écoulements à faible nombre de Reynolds, à partir de la loi de Darcy :

$$K = u_D \cdot \frac{e}{\Delta P} \cdot \mu = \frac{Q}{S} \cdot \frac{e}{\Delta P} \cdot \mu \quad [1]$$

où u_D est la vitesse de filtration, e et S l'épaisseur et la section de l'échantillon, ΔP la pression différentielle mesurée à partir de la hauteur de la colonne d'eau, Q le débit volumique mesuré à partir du déplacement de la colonne d'eau entre 2 repères et μ la viscosité dynamique de l'air.

Les mesures, réalisées sur une population de 10 échantillons, sont répétées 3 fois par échantillon. Pour compléter cette série d'expérimentation, des images microtomographiques des échantillons enrobés de résine ont été réalisées à l'US2B à l'aide d'un microtomographe PHOENIX. L'objectif était à la fois de vérifier l'étanchéité (absence de bulles d'air dans la résine) et l'épaisseur (infiltration limitée de la résine dans les pores) de la coque ainsi constituée mais aussi de mesurer une section droite moyenne de chaque échantillon ainsi que son épaisseur. Les résultats sont présentés dans le tableau 1. Ils sont de plus validés par les mesures réalisées par le laboratoire BIA dans le cadre de l'ANS Perméabilité.

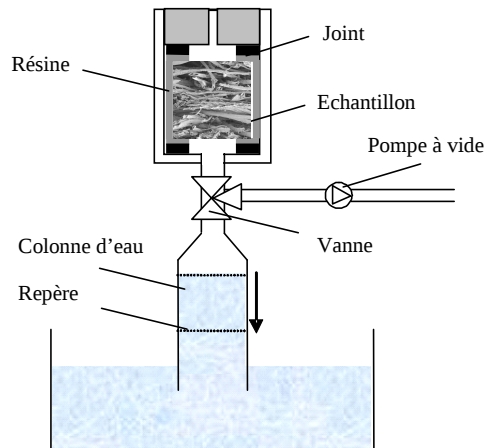


Figure 2. Schéma du perméamètre

3. Microstructure et perméabilité

3.1. Modèle théorique

Le modèle d'écoulement du rayon hydraulique ou de Kozeny-Carman est utilisé pour déterminer une perméabilité théorique du matériau à partir de paramètres morphologiques du réseau des pores (Dullien, 1992). Ce modèle peut être appliqué dans le cas d'un espace poral interconnecté dans lequel les pores ont une taille uniforme. La relation de Kozeny-Carman, dérivée de la combinaison de la relation de Hagen-Poiseuille et de la loi de Darcy, donne la perméabilité K sous la forme :

$$K = \frac{\varepsilon_0^3}{k_0 \cdot \tau^2 \cdot (1 - \varepsilon_0)^2 \cdot A_0^2} \quad [2]$$

où ε_0 est la porosité ouverte, A_0 est la surface spécifique ou aire de l'interface pores/fibres ramenée au volume solide, k_0 est le facteur de forme des pores (compris entre 2 et 3 en fonction de la forme du pore (Dullien, 1992)) et τ est la tortuosité moyenne des pores.

3.2. Caractérisation morphologique du réseau des pores

La microtomographie aux rayons X est une technique d'imagerie non destructive de plus en plus couramment utilisée en sciences des matériaux, permettant d'obtenir des images tridimensionnelles directement numérisées et de résolutions très importantes, jusqu'à 0,5 μm . Des images ont été réalisées à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facilities, Grenoble) sur des échantillons cylindriques d'environ 1 cm de diamètre avec une résolution égale à 4,91 μm . Des outils issus de la morphologie mathématique (Matheron, 1967, Coster *et al*, 1985) sont utilisés pour traiter les images en niveaux de gris obtenues et en extraire des paramètres morphologiques et topologiques en 3D. Les images sont nettoyées puis segmentées afin de séparer la phase fibreuse de l'espace poral (figure 3). Les seuils de la segmentation sont déterminés à la fois à partir de l'histogramme des niveaux de gris de l'image, de la visualisation et de la porosité calculée sur l'image, comparée à une porosité calculée à partir de la densité du matériau.

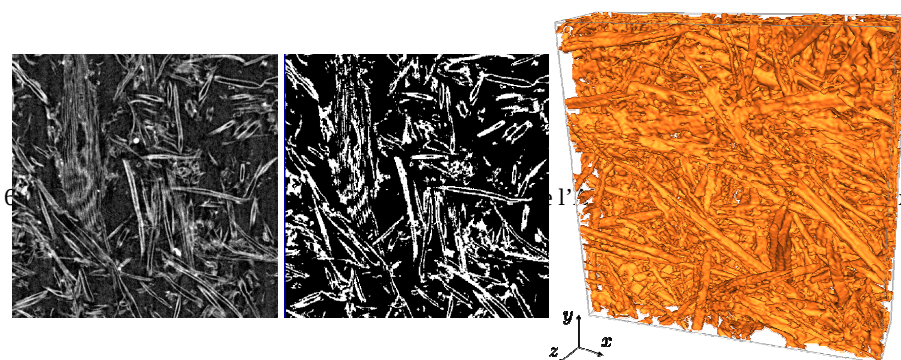


Figure 3. A gauche et au centre : coupes tomographiques longitudinales avant et après seuillage ($2 \times 2 \text{ mm}^2$). A droite : rendu volumique ($1,3^2 \times 0,3 \text{ mm}^3$)

3.2.1. Recherche d'un VER

La première étape de la démarche consiste à rechercher la taille d'un volume élémentaire représentatif, basée en particulier sur la stabilisation de propriétés de la microstructure : connexité, porosités (réelle ε_r , ouverte ε_0), taille des fibres et des pores (Lux, 2005). La figure 4 présente ainsi des granulométries des pores (dans ce calcul, les pores correspondant aux lumens ne sont pas pris en compte), obtenues à partir d'ouvertures morphologiques (Coster *et al*, 1985) par des sphères et réalisées sur des volumes de taille croissante. Les distributions se stabilisent à partir d'un volume égal à $1,7 \text{ mm}^3$ et se rapprochent d'une loi gamma, généralement bien adaptée à la modélisation de la taille des pores dans les papiers. On accède de plus à des informations sur la structure du réseau des pores (respectivement des fibres) et sur les longueurs de corrélation en calculant des *covariogrammes* (Coster *et al*, 1985) dans différentes directions de l'espace mettant en évidence une orientation privilégiée des pores et des fibres dans des plans parallèles aux faces. Compte tenu de toutes les grandeurs mesurées, on obtient finalement une taille de VER égale à $1,7 \text{ mm}^3$ ($1,8 \times 1,8 \times 0,47 \text{ mm}^3$) (Lux, 2005).

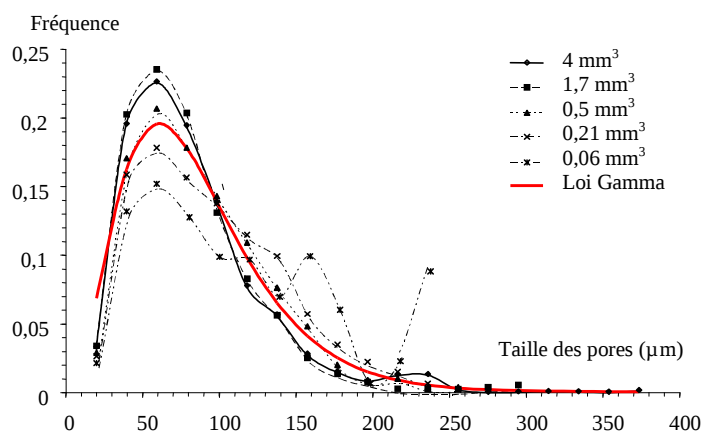


Figure 4. Courbes granulométriques de la taille des pores en fonction de la taille du volume étudié

3.2.2. Mesures morphologiques

Les mesures des paramètres décrits dans [2] sont réalisées sur un volume représentatif de taille $400 \times 400 \times 256$ voxels ($1,96 \times 1,96 \times 1,26$ mm³). La porosité ouverte ε_0 est calculée après avoir défini l'espace poral interconnecté aux faces perpendiculaires au flux d'air. Il apparaît ici que seulement 0,1 % des pores (correspondant à des lumens) ne sont pas connectés à l'espace poral. La tortuosité des pores τ , définie par le rapport de la longueur du pore à la distance entre l'entrée et la sortie du pore reliant les faces opposées de l'échantillon, est calculée en tout point de l'espace poral à partir de *dilatations géodésiques en 26-connexité* (Jeulin, 1998) qui donnent le plus court chemin pour aller d'une face à l'autre en passant par ce point. Les pentes des tangentes aux covariogrammes mesurées dans les 13 directions de la trame cubique donnent de plus accès à l'aire de l'interface pores-fibres (Matheron, 1967) et permettent de calculer la surface spécifique A_0 .

Une étude de sensibilité au seuillage des différentes grandeurs mesurées a été réalisée et montre qu'en particulier la porosité ouverte et la surface spécifique ne varient que de 1 à 3% pour des seuils autour du seuil choisi qui donnent une visualisation acceptable du matériau (contours conservés en particulier), avec des variations relatives de la perméabilité de l'ordre de 10 à 15%. Les résultats sont présentés dans le tableau 1.

3.3. Comparaison des perméabilités théoriques et expérimentales

Les résultats des mesures expérimentales et des mesures réalisées sur les images 3D sont regroupés dans le tableau 1. On présente la valeur de la perméabilité théorique $K_{théo}$ calculée pour 2 valeurs du facteur de forme $k_0=2$ (pores de section droite circulaire) et $k_0=3$ (pores plats).

Tableau 1. Mesures de K expérimental (perméamètre) et théorique (images 3D)

Mesures de K expérimental (perméamètre)				Mesures de K théorique (images 3D)					
Q l/mn	u_D m/s	ΔP Pa	K_{exp} (Darcy)	ε_r (%)	ε_0 (%)	τ	A_0 mm ⁻¹	k_0	$K_{théo}$ (Darcy)
1,63 (0,39)	0,43 (0,08)	1380 (33)	49 (7)	83	83	1	253	2	152
								3	101

Les valeurs expérimentales et théoriques sont du même ordre de grandeur, avec toutefois des résultats plus proches dans le cas d'un facteur de forme égal à 2, ce qui correspond à des pores écrasés comme attendu du fait du procédé d'élaboration et prévu de plus par les covariogrammes. Notons que les mesures expérimentales sont difficiles à mettre en œuvre et que la microstructure a pu être modifiée durant

l'essai notamment lors du trempage dans la résine ; de plus, une estimation du nombre de Reynolds donne des valeurs proches de 1, ce qui indique que l'écoulement est en limite du régime de Darcy.

4. Conclusion

Nous proposons dans ce travail une démarche de prédiction de la perméabilité de matériaux fibreux de forte porosité à partir de paramètres structuraux caractéristiques du réseau interconnecté des pores. Des mesures morphologiques, réalisées sur des images 3D acquises par microtomographie aux rayons X, sont intégrées dans le modèle de Carman-Kozeny, bien adapté au type des pores de l'isolant fibreux étudié (pores interconnectés, taille des pores uniforme) et permettant de calculer une perméabilité théorique. La démarche est validée par comparaison des valeurs obtenues à des mesures expérimentales réalisées à l'aide d'un perméamètre spécialement adapté à ce matériau. Il s'agit maintenant d'étendre cette démarche à d'autres types de matériaux, dont les réseaux de pores présentent une morphologie différente : bois, mousses solides. Ce sont des matériaux présentant une distribution bimodale de tailles de pores (pores d'une part et connections entre les pores d'autre part). Dans ce cas, le modèle de Carman-Kozeny n'est plus adapté (taille des pores non uniforme) et des modèles de type série-parallèle sont en cours de développement.

5. Bibliographie

Coster M., Chermant J.L., *Précis d'analyse d'images*, Presses du CNRS, 1985.

Dullien F.A.L., *Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure*, second ed., Academic Press, 1992.

Faessel M., Delisée C., Bos F., Castéra P., « Modelling of random cellulosic fibrous networks based on X-ray tomography and image analysis », *Composites Science and Technology*, vol. 65, 2005, p. 1931-1940.

Jeulin D., « Probabilistic models of structures », *Probamat-21st century: probabilities and materials*, p. 233-257, Perm, Russie, 1998.

Lux J., Comportement thermique macroscopique de milieux fibreux anisotropes : étude basée sur l'analyse d'images tridimensionnelles, Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, 2005.

Lux J., Ahmadi A., Gobbé C., Delisée C., « Macroscopic thermal properties of real fibrous materials: Volume averaging method and 3D image analysis », *Int. J. Heat Mass Transfer*, vol. 49, 2006, p. 1958-1973.

Matheron G., *Eléments pour une théorie des milieux poreux*, Paris, Masson, 1967.