


# Mechanical multiscale modelling of fibrous materials with application to electrospun networks

**Doctoral Thesis**

**Author(s):**

Domaschke, Sebastian 

**Publication date:**

2019

**Permanent link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-b-000410576>

DISS. ETH NO. 26328

**MECHANICAL MULTISCALE MODELLING OF  
FIBROUS MATERIALS WITH APPLICATION TO  
ELECTROSPUN NETWORKS**

A thesis submitted to attain the degree of  
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH  
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

SEBASTIAN DOMASCHKE  
Dipl.-Ing. (MSc), TU Dresden  
born on 24th April 1988  
citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Edoardo Mazza, examiner  
Dr.-Ing. Alexander E. Ehret, co-examiner  
Prof. Dr. Artem Kulachenko, co-examiner

2019



# Abstract

---

Fibrous materials are ubiquitous in nature and technical applications, owing to their many advantages including their lightweight and porous multi-scale structure, their high surface-to-volume ratio and their flexibility in properties, which can be adapted to different environments and requirements. A key question concerns the relation between mechanical properties at the macro- and microscale. Fibrous structures consist of single fibres interacting with each other at their contact points. Their macroscopic mechanical behaviour differs from their solid counterparts as, besides the base material, also the fibre arrangement, shape and interaction properties have a major impact. Here, suitable experiments and modelling approaches are exploited to shed light on the multi-scale mechanical behaviour of fibrous materials.

Electrospun networks (ESNs), a class of synthetic nonwovens with cost-efficient large scale production capabilities, serve as reference structure for modelling and experimental studies. A 3D discrete network model was developed in this thesis and utilised to investigate the mechanical behaviour of ESNs on the fibre, network and macroscopic material scale. To this end, first the computational generation of 2D random networks was investigated. The study reveals that common algorithms for modelling the planar distribution of fibres lead to unintended inhomogeneity and anisotropy, especially for long fibres much larger than the modelling domain. To generate truly random planar networks, an improved algorithm is proposed and validated

by an analytical approach and Monte Carlo simulations. In a next step, the complete 3D network structure is generated by a finite element based computation of the fibre deposition process inspired by the network formation in electrospinning.

The low out-of-plane curvature of fibres in ESNs and other nonwovens motivated reduced modelling approaches assuming a planar fibre distribution and a negligible out-of-plane deformation aiming for better computational efficiency. A 3D approach was used as a tool to assess typical assumptions of planar models, giving access to micro scale properties of the network. Good agreement was observed between 3D and planar models in terms of macroscopic network response for high porosities ( $> 90\%$ ), validating the planar approach as an efficient alternative with regard to the in-plane macroscopic response of ESNs. However, independent of the porosity, the local fibre kinematics show a mismatch due to the restrictive assumptions of planarity in a 2D model. The 3D model reveals a significant out-of-plane deformation of single fibres which cannot be considered in planar models. These results suggest in general to use a 3D approach for modelling the multi-scale mechanical behaviour of fibrous materials, even if they display a nearly planar fibre structure but especially if microscopic mechanics of the network play an important role.

The 3D discrete modelling approach provides the possibility for bottom-up computations. Characterised only by microstructural fibre information, sample weight and dimension, an assessment of the model's predictive capability was conducted. The single fibres' mechanical properties were extracted from AFM-based three-point bending and micromechanical testing. An inverse finite element routine and an appropriate analytical approach based on a Timoshenko beam and torsional springs was derived, overcoming uncertainties in the treatment of boundary conditions for the extraction of single fibre material parameters. The study shows a clear dependence of single fibre mechanical properties on fibre diameter and a correlation of the Young's modulus with morphological changes of the polymer. Further infor-

mation on the shape of single fibres was extracted from scanning electron micrographs. The final 3D model, describing ESNs in a statistically representative manner, was used for mechanical simulations and the effective material response was compared with tensile experiments of the respective samples. Direct prediction by the discrete model shows good qualitative agreement with the experiments. The network's yield stress, however, was overestimated. Comparison with computed tomography data of the sample ruled out a significant difference in fibre disposition between model and sample material. Specific adjustments of the material properties and number of connections between fibres were identified as sufficient to obtain a sound agreement with macroscopic experimental data of two distinct samples, demonstrating the predictive capabilities of the model. Furthermore, the discrete network approach was utilised to access single fibre deformations, revealing non-affine kinematics and stretch distributions. A comparison of the DNM to an affine analytic approach showed that the mismatch on the microscale and the good match on the macroscale are no contradiction.

Finally, the out-of-plane kinematics of single fibres and their influence on whole network deformation were investigated in detail. An analytic planar model equipped with an out-of-plane buckling component predicted a possible major increase of thickness in uniaxial tension of planar fibrous structures. Dedicated experiments confirmed the auxetic effect with unprecedented Poisson's ratios, and the fibre segments' aspect ratio as the main network property to tune this behaviour. Buckling instability as main driver for the auxetic effect was confirmed by top and side view scanning electron micrographs and by results of the 3D multi-scale modelling approach capable of tracking each fibre segment. Compressed fibre segments buckle out-of-plane and increase the distance between layers of fibres on the network scale leading to an overall thickness increase.

In summary, the access to microscale information, predictive bottom-up simulations, and the rationalisation of the auxetic effect in ESNs demonstrate the value of experiments and models developed and used in this dissertation to understand and tailor the multi-scale mechanics of fibrous materials.



# Zusammenfassung

---

Strukturen, die aus einem Netzwerk von Fasern bestehen, sind allgegenwärtig in biologischen und in technischen Anwendungen. Sie bieten besondere Vorteile wie ihre leichte und poröse mehrskalige Struktur, ihr hohes Oberflächen-Volumen-Verhältnis und ihre Flexibilität in den Materialeigenschaften, welche sich an unterschiedliche Umgebungen und Anforderungen anpassen lassen. Eine Schlüsselfrage betrifft den Zusammenhang zwischen dem Fasernetzwerk und dem makroskopischen mechanischen Materialverhalten. Netzwerkstrukturen bestehen aus einzelnen Fasern, die an ihren Kontaktstellen miteinander interagieren. Ihr makroskopisches mechanisches Verhalten ist abhängig von Faseranordnung, -form und -wechselwirkung. Geeignete Experimente und Modellierungsansätze werden in dieser Arbeit genutzt, um das mehrskalige mechanische Verhalten von Faserwerkstoffen zu untersuchen.

Elektrogesponnene Netzwerke (ESNs) als eine Klasse von synthetischen Vliesstoffen mit kostengünstigen grossskaligen Produktionsmöglichkeiten dienen als Referenzstruktur für die Modellierung und experimentelle Untersuchung von faserigen Materialien. Ein 3D diskretes Netzwerkmodell wurde in dieser Thesis entwickelt und verwendet, um das mechanische Verhalten von ESNs auf der Faser-, Netzwerk- und makroskopischen Materialskala zu beschreiben. Zu diesem Zweck wurde zunächst die computerbasierte Erzeugung von 2D Netzwerken untersucht. Die Ergebnisse der Un-



tersuchung zeigen, dass gängige Algorithmen für die planare Verteilung von Fasern zu unbeabsichtigten inhomogenen anisotropen Netzwerken führen. Dies macht sich insbesondere bei langen Fasern, die viel grösser als das Modellierungsgebiet sind, bemerkbar. Um homogene und isotrope Netzwerke zu erzeugen, wird ein verbesserter Algorithmus vorgeschlagen, welcher durch analytische Überlegungen und Monte-Carlo-Simulationen validiert wird. Die vollständige 3D-Netzwerkstruktur wird durch eine vom Elektrosponnen inspirierte Finite-Elemente-Berechnung des Faserablagerungsprozesses erzeugt.

Die geringe Krümmung der Fasern in Dickenrichtung bei ESNs und anderen Vliesstoffen motivierte die Annahme der planaren Faserverteilung in reduzierten Modellierungsansätzen, die auf eine bessere Recheneffizienz abzielen. Um diese und weitere typische Annahmen von planaren Modellen zu bewerten, ist der 3D-Ansatz ein wertvolles Werkzeug, das Zugang zu den Eigenschaften des Netzwerks auf der Faserskala bietet. Eine gute Übereinstimmung zwischen 3D- und planaren Modellen in Bezug auf die makroskopische Netzwerkreaktion konnte für hohe Porositäten ( $> 90\%$ ) beobachtet werden. Damit wurde der planare Ansatz als effiziente Alternative in Bezug auf das makroskopische mechanische Verhalten von ESNs bestätigt. Jedoch zeigt das 3D-Modell eine signifikante Verformung der Einzelfasern in Dickenrichtung, die in planaren Modellen aufgrund deren restriktiven Annahme nicht berücksichtigt werden kann. Die Ergebnisse empfehlen im Allgemeinen die Verwendung eines 3D-Ansatzes zur Modellierung des mehrskaligen mechanischen Verhaltens von Fasermaterialien. Dies gilt ebenfalls, wenn die zu modellierende Faserstruktur nahezu planar ist.

Das 3D diskrete Netzwerkmodell (DNM) bietet die Möglichkeit für einen Bottom-up-Ansatz. Lediglich durch mikrostrukturelle Faserinformationen, Probengewicht und -dimension wird das Modell erzeugt und dessen Vorhersagefähigkeit im Vergleich zu makroskopischen mechanischen Experimenten geprüft. Die mechanischen Eigenschaften der Einzelfasern wur-

den aus AFM-basierten 3-Punkt-Biegeversuchen und mikromechanischen Tests gewonnen. Eine inverse Finite-Elemente-Routine und ein geeigneter analytischer Ansatz basierend auf der Timoshenko-Balken-Theorie und Rotationsfedern wurden hergeleitet, um Unsicherheiten bei der Beschreibung von Randbedingungen für die Berechnung einzelner Fasermaterialparameter zu überwinden. Die Studie zeigt eine klare Abhängigkeit der mechanischen Eigenschaften einer einzelnen Faser vom Faserdurchmesser. Weiterhin wird eine Korrelation des Elastizitätsmoduls zu morphologischen Veränderungen des Polymers aufgezeigt. Informationen über die Form der einzelnen Fasern wurden aus Rasterelektronenmikroskopaufnahmen gewonnen. Das endgültige 3D-Modell, welches ESNs statistisch repräsentativ beschreibt, wurde für mechanische Simulationen verwendet und die effektive Materialantwort mit Zugversuchen der jeweiligen Proben verglichen. Die direkte Vorhersage durch das diskrete Modell zeigt eine gute qualitative Übereinstimmung mit den Experimenten. Die Fließspannung des Netzwerks wurde jedoch vom Modell überschätzt. Der Vergleich mit Computertomographiedaten der Probe schloss einen signifikanten Unterschied in der Faserverteilung zwischen Modell und Probenmaterial aus. Anpassungen der Materialeigenschaften und der Anzahl der Verbindungen zwischen den Fasern führen zu einer guten Übereinstimmung mit makroskopischen Versuchsdaten, welches die Vorhersagekraft des Modells demonstriert. Darüber hinaus wurde der diskrete Netzwerkansatz verwendet, um auf die lokalen Faserverformungen zuzugreifen, wobei nicht-affine Kinematiken und Dehnungsverteilungen beobachtet werden konnten. Ein Vergleich des DNM mit einem affinen analytischen Ansatz zeigt, dass der Unterschied auf der Mikroskala und die gute Übereinstimmung auf der Makroskala kein Widerspruch darstellen müssen.

Abschliessend wurde die 3D Kinematik von Einzelfasern und deren Einfluss auf die makroskopische Netzwerkverformung im Detail untersucht. Ein planares analytisches Modell, ausgestattet mit einer Knickkomponente in Dickenrichtung, sagte eine wesentliche Erhöhung der Dicke im einachs-

gen Zugversuch voraus. Experimente bestätigten das auxetische Verhalten mit beispiellos negativen Querkontraktionszahlen. Die Längen-zu-Dicken-Verhältnisse der Fasern wurden als wichtigste Netzwerkeigenschaft für die Optimierung des auxetischen Verhaltens bestätigt. Aus elektronenmikroskopischen Aufnahmen und den Ergebnissen des 3D-Modells liess sich die Balkenknickung als Hauptursache für den auxetischen Effekt verifizieren. Fasersegmente knicken unter Druck in Dickenrichtung, vergrössern damit den Abstand zwischen Faserschichten und führen zu einer Erhöhung der Gesamtdicke des Netzwerkes.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der Zugang zu mikroskopischen Informationen, die Möglichkeit von prädiktiven Bottom-up-Simulationen und das erarbeitete Verständnis des auxetischen Effekts in ESNs den Wert der in dieser Dissertation entwickelten und verwendeten Experimente und Modelle verdeutlicht.