Mécanique des milieux fibreux auto-enchevêtrés : application à un alliage à mémoire de forme de type Nickel-Titane

Benjamin Gadot

▶ **To cite this version:**

Benjamin Gadot. Mécanique des milieux fibreux auto-enchevêtrés : application à un alliage à mémoire de forme de type Nickel-Titane. Mécanique des structures [physics.class-ph]. Université Grenoble Alpes, 2015. Français. NNT : 2015GREAI010 . tel-01171240

HAL Id: tel-01171240

https://theses.hal.science/tel-01171240

Submitted on 3 Jul 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, électrochimie**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Benjamin GADOT

Thèse dirigée par **David RODNEY** et
codirigée par **Laurent ORGEAS**

préparée au sein des **Laboratoires : 3SR** et **SIMAP**
dans **l'École Doctorale IMEP-2**

Mécanique des milieux fibreux auto-enchevêtrés : application à un alliage à mémoire de forme de type Nickel-Titane

Thèse soutenue publiquement le **10/03/2015**,
devant le jury composé de :

M. Philippe BOISSE
Professeur à l'INSA Lyon (Président)
M^me^ Dominique POQUILLON
Professeur à l'ENSIACET Toulouse (Rapporteur)
M. Eric MAIRE
Directeur de recherche à l'INSA Lyon (Rapporteur)
M. David RODNEY
Professeur à l'université de Lyon (Directeur de thèse)
M. Laurent ORGEAS
Directeur de recherche au CNRS (Co-directeur de thèse)
M^me^ Sabine ROLLAND DU ROSCOAT
Maître de conférence à l'UJF (Co-encadrant de thèse)
M. Didier BOUVARD
Professeur à Grenoble INP (Invité)

Remerciements

Comme pour tout projet, cette thèse a été permise par un certains nombre de personnes, en premier lieu les personnes qui ont pu m'encadrer : Laurent pour son enthousiasme inépuisable, David pour sa franchise et son expertise, Sabine pour son apport sur la tomographie et l'opportunité de participer à des manipulations au synchrotron, ainsi que Didier pour ses discussions sur le frittage du NiTi.

Tout ce travail n'aurait pas vu le jour si je n'avais pu faire d'études auparavant, ce qui a pu être possible grâce ma famille, tant mes parents que mes frères et sœurs, mais comme une image est plus parlante qu'une longue liste, je vous laisse le voir ci dessous.

Une thèse ne se fait pas dans un vide, et j'ai eu l'occasion de travailler au sein de deux laboratoires et de deux équipes. Il me faut donc remercier, pour GPM2, mes collègues Jérémy, Pawel, Denis, Édouard, Ben, Ashraf, Audrey, Mathilde, Mathieu le forgeron, mais aussi Magalie, Mathieux (le deuxième), Sébastien, Anthony, Xavier.

J'ai aussi eu l'occasion de travailler à 3SR aux côtés de nombreux doctorants et post-docs, en particulier Benjamin (l'autre !), Dim et Tanguy (LE fameux duo

KFC !) , Steven, les trois Maximes, Gus (tu le sais bien, qui aime bien, châtie bien !), Victoria et Audrey. Parmi les plus anciens, Mamadou et Barth (les philosophes) avec qui nous avons pu faire, défaire et refaire le monde chaque jour au repas, ainsi que Pierre, dont le travail est une pierre angulaire sur laquelle repose celui-ci. Enfin, une pensée spéciale pour Oriol, dont le travail de stage a permis d'augmenter les données dont nous disposons pour nos matériaux.

Finalement, j'aimerais remercier particulièrement quelques personnes : Georges pour l'opportunité qu'il m'a apporté de faire de l'enseignement en m'aidant particulièrement bien, Pascal, Charles, Xavier et Franck pour leur aide technique sur les manipulations (et en général dans l'urgence !). Ces remerciements vont aussi aux personnels administratifs (Claire, Claude, Carole), dont tout le monde sait que c'est elles qui tiennent la barque entière !

Table des matières

Remerciements i

Table des matières iv

Introduction générale 1

1 État de l'art 3
I Milieux fibreux 5
II Alliages à mémoire de forme 39
III Bilan et Objectifs de la thèse 48

2 Fabrication et caractérisation d'un milieu auto-enchevêtré à base de NiTi 51
I Introduction 53
II Experimental procedure 54
III Wire properties after processing 59
IV Mesostructure of the entanglements 61
V Thermomechanical behavior 62
VI Concluding Remarks 71

3 Comparaison entre milieux auto-enchevêtrés fabriqués à partir de fils superélastique, élastoplastique et viscoélastique 75
I Matériaux et méthodes expérimentales 77
II Résultats 84
III Conclusions 97

4 Comparaison Expériences–Simulations 99
I Procédures expérimentales 101

II Procédures numériques 104
III Analyse des squelettes issues des mésostructures expérimentales et numériques 108
IV Résultats 110
V Discussion 115
VI Conclusion 118

Conclusions et perspectives **121**

Bibliographie **123**

Liste des figures **133**

Nomenclature **141**

Introduction générale

Depuis de nombreuses années, les matériaux tendent à s'adapter à l'usage que l'on souhaite en faire, en particulier avec l'apparition des matériaux architecturés. Ces matériaux se déclinent sous de nombreuses formes, dont les plus populaires sont probablement les composites. Il en existe cependant d'autres moins remarquées, mais d'une importance considérable, comme les matériaux fibreux sans matrice. Les papiers sont également de bons exemples de ces matériaux, tout comme les tissus (pour la production de vêtements) et les milieux biologiques (fibres musculaires ou cytosquelettes). Ces milieux fibreux représentent un fort potentiel pour l'adaptation du matériau à un usage auquel le matériau dense ne pourrait pas être destiné.

C'est le cas des alliages à mémoire de forme de type Nickel-Titane (NiTi) qui font l'objet de recherches dans le but de pouvoir remplacer les implants denses, trop rigides, utilisés à l'heure actuelle dans les prothèses osseuses par un matériau architecturé moins rigide. Les prothèses denses présentent l'inconvénient de ne pas pouvoir être colonisées par le milieu biologique dans lequel elles baignent, ce qui peut amener à des complications post-opératoire, mais des solutions de revêtement à base de milieux fibreux ont récemment été développées pour améliorer ce point. De fait, les milieux poreux sont directement colonisables par les cellules osseuses et sont ainsi plus facilement assimilables par l'organisme. Une difficulté est cependant que les milieux poreux à base de NiTi sont actuellement produits principalement par frittage de poudres métalliques. Ces méthodes posent des problèmes majeurs, notamment d'oxydation et ne permettent pas de donner aux implants un comportement superélastique similaire à celui observé dans les alliages à mémoire de forme massifs.

Dans le cadre de cette thèse, la question de l'utilisation de milieux fibreux à 3 dimensions constitués de fibres de NiTi pour remplacer les milieux poreux traditionnels s'est posée. D'une part, l'objectif était de mettre en place un procédé d'élaboration ne faisant pas appel à des processus de type frittage afin de limiter les températures de traitement et éviter ainsi les complications liées à l'oxydation. D'autre part, l'objectif

était de trouver un procédé d'élaboration simple et peu coûteux, évitant en particulier les techniques de tissage à trois dimensions, qui restent complexes, onéreuses et difficiles à mettre en œuvre. Les milieux fibreux non-frittés constitués de fibres courtes n'ayant pas de bonnes propriétés mécaniques en l'absence de matrice, nous nous sommes tournés vers des structures monofilamentaires, constituées de l'auto-enchevêtrement d'une fibre unique. Le travail de thèse de Loïc Courtois à l'INSA de Lyon ayant montré que l'enchevêtrement d'une fibre initialement droite menait à des structures très hétérogènes, nous avons opté pour une méthode alternative, consistant en l'enchevêtrement d'une fibre initialement courbée sous la forme d'un ressort. Nous verrons que cette architecture permet de créer un milieu dont la mésostructure homogène est proche de celle des mousses ouvertes, mais ne nécessitant pas de hautes températures de mise en œuvre.

L'objectif de la thèse est ainsi l'élaboration et la caractérisation de milieux poreux monofilamentaires à base de NiTi, avec comme objectif appliqué de pouvoir produire des milieux homogènes superélastiques, et comme objectif plus fondamental, d'approfondir notre connaissance de leur mécanique en lien avec une caractérisation de leur mésostructure hors et sous déformation.

Ainsi, le manuscrit est organisé autour de quatre chapitres. Le premier chapitre est une revue bibliographique sur les milieux fibreux, leur structure, propriétés mécaniques ainsi que sur la simulation et caractérisation par tomographie à rayons X de leurs propriétés mécaniques et de leur mésostructure. Ce chapitre est complété par quelques éléments concernant les propriétés et la mise en forme des alliages à mémoire de forme de type NiTi. Le second chapitre est tiré d'un article soumis à *Acta Materialia* concernant la fabrication et la caractérisation d'un milieu auto-enchevêtré à base d'un seul fil de NiTi. Dans le troisième chapitre, nous cherchons à découpler les effets liés à la mésostructure de ceux induits par la nature du fil sur le comportement mécanique des enchevêtrements. Pour cela, nous avons produit et caractérisé mécaniquement des milieux d'architecture similaire au chapitre 2 à partir de fils ductile (cuivre), viscoélastique (polyamide) et superélastique (NiTi). Dans le quatrième chapitre, nous avons scruté finement le lien entre la mésostructure des enchevêtrements et leurs propriétés mécaniques en comparant un essai de compression réalisé *in situ* dans un tomographe avec des simulations par éléments discrets.

1 État de l'art

Ce premier chapitre est destiné à faire le point sur l'état de l'art concernant dans un premier temps les milieux fibreux dans leurs aspects mésostructuraux et mécaniques et les outils de simulation et de caractérisation par microtomographie à rayons X de leurs propriétés mésostructurales et mécanique. Dans un second temps, nous présenterons les propriété des alliages à mémoire de forme de type Nickel-Titane. Ce chapitre se termine par un bilan des connaissances sur les milieux fibreux et les alliages à mémoire de forme, pour en extraire des problématiques.

Sommaire

I Milieux fibreux 5
I.1 Généralités sur les milieux fibreux 5
I.2 Définitions des milieux fibreux 6
I.2.a Caractéristiques de la fibre 6
I.2.b Caractéristiques des architectures fibreuses . . 7
I.2.c Conclusion 8
I.3 Quelques exemples d'utilisation actuelle 9
I.3.a Isolation thermique et phonique 9
I.3.b Support à forte surface d'échange 9
I.3.c Matériau de structure 10
I.4 Mécanique des milieux multi-fibres 11
I.4.a Phénoménologie dans le cas de milieux fibreux non cohésifs 11
I.4.b Effet de la densité relative 13
I.4.c Effet de l'élancement de la fibre 14
I.4.d Importance des contacts fibre-fibre 15
I.4.e Effet de la nature de la fibre 16
I.4.f Conclusion 17

I.5 Mécanique des milieux auto-enchevêtrés 17
I.5.a Fibres initialement droites 18
I.5.b Ressorts auto-enchevêtrés 21
I.5.c Conclusion 24
I.6 Modélisation des milieux fibreux 25
I.6.a Modèles analytiques 25
I.6.b Modèles numériques 30
I.7 Apports de la micro-tomographie à rayons X 34
I.7.a Méthode 34
I.7.b Résultats 37
I.8 Conclusion 38
II Alliages à mémoire de forme 39
II.1 Microstructure des AMF de type NiTi 39
II.1.a Austénite 39
II.1.b Martensite 39
II.1.c Transformation de phase martensitique 40
II.2 Comportement thermomécanique des AMF NiTi 41
II.2.a Superélasticité 41
II.2.b Ferro-élasticité 43
II.2.c Effet mémoire 44
II.3 Mise en forme des AMF 44
II.3.a Pièces massives 44
II.4 Quelques exemples d'utilisation 46
II.4.a Utilisation comme structure massive 46
II.4.b Pièces architecturées 47
II.5 Conclusion 48
III Bilan et Objectifs de la thèse 48

I. Milieux fibreux

I.1. Généralités sur les milieux fibreux

De par leur microstructure particulière à la fois continue (la matière forme un continuum déformable dans les fibres allongées) et discrète (présence de nombreuses interfaces qui délimitent les fibres entre elles), les milieux fibreux sont des matériaux particuliers, à l'**intersection entre les milieux granulaires, les mousses et les matériaux denses**. Ceci impacte nombre de leurs propriétés physiques et mécaniques, ainsi que les formes qu'ils peuvent prendre. Afin de pouvoir caractériser ces matériaux, leurs microstructures et propriétés, il est nécessaire de disposer d'un certain nombre de caractéristiques que nous allons décrire par la suite en les illustrant par des exemples.

Les milieux fibreux sont utilisés depuis des milliers d'années, mais produits depuis plus longtemps encore par la nature. Ce n'est cependant que depuis moins d'un siècle que les propriétés mécaniques de ces milieux ont commencé à faire l'objet de recherches, et en particulier depuis une cinquantaine d'années [107]. Ceci peut être mis sur le compte de plusieurs facteurs : une recherche de l'allègement des structures dû à la course aux économies d'énergies d'une part, et une modification de l'état d'esprit de la communauté matériaux, où les matériaux sont pensés ou architecturés pour une application particulière. Ce courant de pensée est notamment porté par Ashby [3] et Bréchet et Embury [17].

Les milieux fibreux sont multi-formes avec des fibres continues ou discontinues, ordonnées ou désordonnées mais aussi avec des architectures qui peuvent être multi-échelles, comme cela est visible sur le schéma de la figure 1.1 pour le cas d'un tissu pour renfort de matériaux composites. Ces différentes échelles rendent d'autant plus importante la caractérisation des milieux sur lesquels portent l'étude.

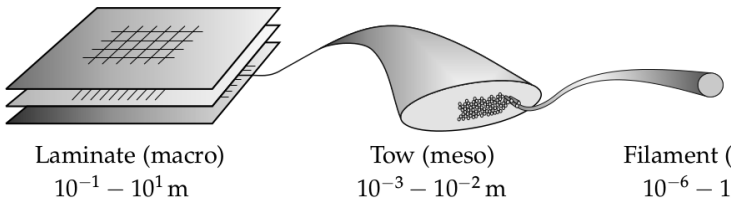


Figure 1.1 Exemple de hiérarchie multi-échelles des milieux fibreux : un renfort textile constitué de mèches de fibres pour composite, d'après Cornelissen [22].

Si beaucoup de matériaux fibreux sont manufacturés, ils sont également bien présents dans les systèmes biologiques, comme dans les cellules [34]. Le cas du cytosquelette des cellules neuronales (cf. figure 1.2) est une bonne illustration de la complexité

des milieux fibreux naturels : ses fibres sont architecturées, avec plusieurs types de nanofibrilles unitaires, ayant chacune un comportement mécanique différent. Un tel milieu fibreux est en perpétuelle évolution pour s'adapter à tout moment aux sollicitations extérieures.

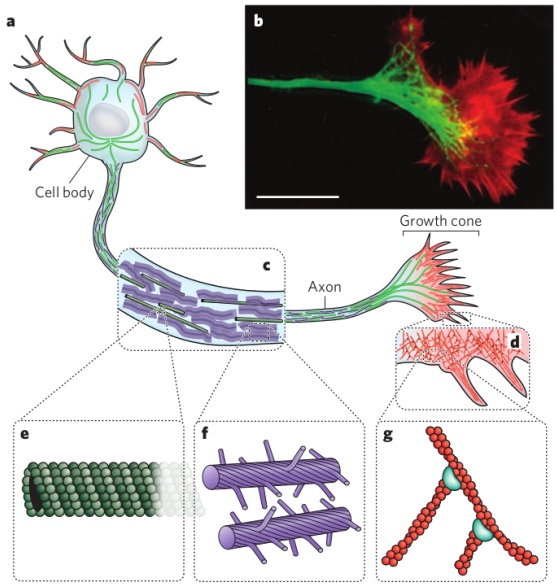


Figure 1.2 Structure du cytosquelette d'une cellule vivante, présentant trois types de fibres : (a) schéma de neurone (b) micrographie de neurone (c) axone (d) cône de croissance (e)microtubule, (f)filament d'actine, (g)filament intermédiaire, d'après Flechter et Mullins [34].

I.2.Définitions des milieux fibreux

Une première définition de fibreux, issue du dictionnaire, est la suivante : **"composé de fibres, contenant des fibres"**. Les cordages, tissus, tresses, tricots, câbles, torons, papiers, feutres, laines et autres non-tissés sont donc des milieux fibreux, et présentent des différences importantes au niveau de leur architecture. Afin de pouvoir cerner le milieu dont nous parlerons ici, un certain nombre de caractéristiques sont à définir. Comme nous ne nous intéressons ici qu'aux **milieux fibreux sans matrice**, il ne sera pas question de matériaux composites.

I.2.a.Caractéristiques de la fibre

En plus d'être définies par leur **matériau constitutif** qui peut être de toute origine (animale, végétale, minérale ou synthétique) et de tout type (métal, céramique ou polymère), les fibres constitutives de tout milieu fibreux sont aussi caractérisées par leur géométrie.

Une fibre est un élément de géométrie à une dimension : le rapport de sa longueur (l_f) sur une dimension caractéristique de sa largeur (diamètre ou côté, d_f), appelé **élancement** ($r = l_f/d_f$), est grand (typiquement supérieur à 10). Cette valeur est bien entendu fonction de l'utilisation souhaitée de la fibre et des procédés de fabrication, mais des rapports de plusieurs centaines voire milliers sont courants. Une fibre sera dite longue si son élancement est important (typiquement supérieur à 100). Par exemple, pour le papier, les fibres sont relativement courtes (élancement $\simeq$ 50 à 100), alors que dans des tissus, les fibres ou les mèches de fibres qui les constituent sont très longues (élancement $\gg 1000$).

Les formes des **sections** des fibres sont nombreuses et peuvent être complexes, mais pour un certain nombre de procédés de fabrication (extrusion et tréfilage par exemple), les fibres sont à section circulaire. Les fibres d'origine naturelle sont en général moins homogènes dans la géométrie de leurs sections qui peuvent être très complexes. D'autres fibres manufacturées sont extrêmement régulières et présentent une architecture au niveau atomique, comme par exemple les nanotubes de carbone.

La géométrie de la fibre est aussi décrite par sa **tortuosité**, définie mathématiquement comme le rapport de la longueur de la fibre sur la distance entre ses extrémités (longueur de sa corde) : une fibre peut être droite (mèche de fibres de verre par exemple), ou roulée en boule sur elle-même (feutre), ou présenter toute forme intermédiaire. Dans certains cas, les fibres peuvent elles-mêmes être des assemblages de fils plus fins, comme les mèches de fibres de verre , les fils de coton ou les torons de cordage.

I.2.b.Caractéristiques des architectures fibreuses

Les milieux fibreux sont des **assemblages de fibres** qui peuvent être très différents selon la façon dont les fibres sont arrangées. Cette mésostructure peut être caractérisée par plusieurs paramètres. :

- ⇒ Le premier paramètre le plus visible est la **dimension de l'assemblage** : il peut être à une, deux, ou trois dimensions, respectivement comme une corde, un tissu ou une laine.
- ⇒ La **densité relative** ou fraction volumique de fibres (ϕ) des milieux fibreux est également importante pour caractériser leur géométrie globale. Elle est définie comme le rapport de la masse du matériau fibreux sur la masse de matériau dense de même volume global.
- ⇒ En étudiant aussi la façon dont les fibres sont agencées, il est possible de différencier les milieux, en particulier ceux à deux ou trois dimensions en deux grandes catégories : les **milieux ordonnés**, comme les tissus et les **milieux aléatoires**, comme les laines.
- ⇒ De plus, le milieu peut être composé de plusieurs fibres (milieu dit **multifilamentaire**), ou d'une unique fibre (milieu dit **monofilamentaire**), comme certains tricots ou encore les structures de fibres polymères fabriquées par *elec-*

trospinning.

⇒ Le dernier point important caractérisant un milieu fibreux est la présence ou non de **liens entre fibres** qui sont des contacts forts, comme cela peut être le cas pour des laines d'acier frittées, alors que d'autres milieux comme les tissus n'en disposent pas et ont une cohésion qui repose sur les frottements et sur l'enchevêtrement des fibres. Ces différents types de liens jouent un rôle majeur sur les propriétés physiques et mécaniques des milieux fibreux (Masse et collab. [67]).

I.2.c.Conclusion

Le tableau 1.1 illustre par quelques exemples typiques les différents types de milieux fibreux dont nous avons parlé jusqu'à présent, avec leurs caractéristiques. Il montre la diversité des matériaux fibreux dans leur forme, l'agencement de leur architecture fibreuse, la géométrie et la nature des fibres ainsi que celle de leur contacts : il souligne également que ces matériaux doivent être décrits suivant plusieurs critères pour pouvoir être différenciés.

Exemples \ Propriétés	mèche de fibres de renfort composite textile	papier	feutre	nanotubes de carbone
Matériaux de la fibre	chanvre/verre	matériau ligno-cellulosique	poils	carbone
Section de la fibre	irrégulière/circulaire pleine	irrégulière creuse	irrégulière pleine	régulière creuse
Géométrie de la fibre à l'équilibre	droite	courbe	courbe	courbe
Élancement	important	faible	faible	faible
Nombre de fibres	multifilament	multifilament	multifilament	multifilament
Organisation macroscopique	ordonné	aléatoire	aléatoire	aléatoire
Présence de liens	non	oui	non/oui	non
Géométrie de l'objet final	1D	2D	2D/3D	2D/3D

Table 1.1: Exemples de milieux fibreux et de leurs caractéristiques descriptives

I.3.Quelques exemples d'utilisation actuelle

I.3.a.Isolation thermique et phonique

Figure 1.3 Un exemple d'application thermique et phonique de matériaux fibreux : la laine de verre.

Les propriétés d'isolation thermique des matériaux fibreux sont particulièrement bien connues, comme en atteste par exemple l'efficacité des **vêtements techniques de montagne** ainsi que les isolants pour le génie civil tels que la **laine de verre** (figure 1.3). De même, ils présentent une absorption phonique des plus efficaces. Ces deux propriétés sont liées à la microstructure des milieux fibreux.

Les **propriétés thermiques** sont liées à une importante quantité de barrières à la conduction (enchaînements d'interfaces fluide-fibre), ainsi qu'à l'emprisonnement d'une couche d'air. Concernant la conduction au travers du squelette fibreux, les interfaces fibre-fibre sont les endroits clés où le matériau peut conduire la chaleur, mais les dimensions de ces contacts sont bien inférieures à celles de la pièce fibreuse et freinent ainsi la conduction. De plus, cette conduction se fait selon un chemin tortueux, qui augmente la longueur de matière à traverser avant d'atteindre la deuxième paroi de la pièce.

La capacité d'**absorption phonique** est quant à elle liée à la présence de pores de tailles différentes, qui emprisonnent le son et donc empêchent sa réverbération d'un point de vue macroscopique (Chen et collab. [20]). De même que pour les applications thermiques, les points de contact entre fibres sont des points de frottement qui diminuent encore la propagation de l'onde sonore.

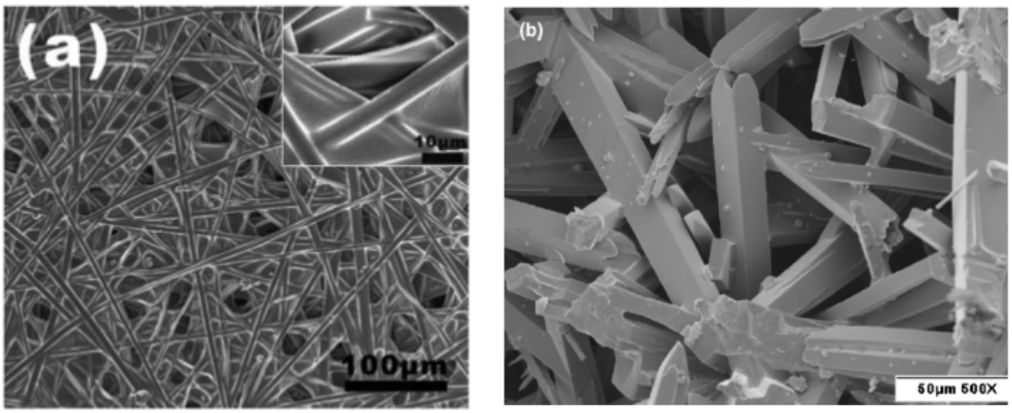
I.3.b.Support à forte surface d'échange

Les milieux poreux et en particulier les fibreux sont bien adaptés à des utilisations nécessitant de **grandes surfaces d'échange** tels que la **filtration**, les **échanges de chaleur** et les **supports de catalyse**. Leur porosité et leur simplicité de mise

en forme (comme par exemple les papiers pour filtres) en font des solutions peu onéreuses et souvent utilisées. Ces matériaux sont utilisés en gros volume pour tous types de filtration de courte durée (type filtre à café, ou chimie ; masques filtrants). Certaines applications (notamment en milieu industriel) nécessitent des supports plus résistants, comme par exemple les filtres pour le vin, fabriqués à base d'amiante et qui sont ainsi ré-utilisables et ne risquent pas de casser une fois humides.

Il est aussi possible de réaliser des échangeurs thermiques à partir de ces milieux. Ces derniers présentent le triple avantage (i) d'être moins chers que des échangeurs à micro-canaux par exemple, (ii) de ne pas engendrer de pertes de charge trop importantes et (iii) de permettre un échange thermique efficace [97].

Pour les catalyseurs, les milieux fibreux permettent là aussi de disposer simplement d'une importante surface d'échange. Le cas extrême étant la fibre composée de catalyseur uniquement, il est possible de trouver un couple support-catalyseur tel que la fibre supporte les contraintes du réacteur chimique (température, contrainte mécanique, milieu chimique), et que la fixation avec le catalyseur proprement dite soit efficace. Un exemple d'application en filtration et catalyse concerne les filtres à particules pour moteurs thermiques, comme le montre Pyzik et Li [81] où le milieu filtrant est aussi le catalyseur, sous forme de fibres courtes (fig. 1.4b). Comme illustré à la figure 1.4a, les milieux fibreux sont aussi utilisés comme collecteurs d'ions.



(a) **(b)**

Figure 1.4 Microstructures de (a) polystyrène fibreux utilisé comme collecteur d'ions Cu^{2+}, d'après Wu et collab. [106] (b) mullite utilisée comme filtre et catalyseur, d'après Pyzik et Li [81].

I.3.c.Matériau de structure

Les matériaux de structure fibreux sont représentés par exemple par des câbles, des tissus et des tricots, mais aussi par les cartons et papiers. Les câbles et tissus sont utilisés notamment pour la navigation, la manutention dans le domaine maritime

(plateforme off-shore) ainsi que dans le domaine du génie civil (câbles de ponts ou de transport par câble) qui nécessite des cordages et des voiles pouvant supporter des contraintes importantes tout en ayant un poids le plus faible possible.

D'autres exemples plus récents d'utilisation des milieux fibreux incluent la fabrication de gilets pare-balles (Holmes et collab. [46]). Des absorbeurs de chocs types matelas ont aussi été fabriqués à partir de matériaux fibreux. D'autres applications ont été faites à partir de milieux fibreux, notamment dans le domaine biomédical. Ceci est dû (dans certains cas) au fait que les matériaux massifs ne sont pas adaptés à une utilisation biomédicale, car trop rigides. Les **stents** ou endoprothèses utilisés en chirurgie endovasculaire sont de bons exemples d'utilisation de matériaux fibreux pour modifier les propriétés de base du matériau et ainsi accéder à un matériau avec des propriétés plus adaptées à l'utilisation que l'on souhaite en faire (rigidité plus faible, meilleure biocompatibilité, etc).

I.4. Mécanique des milieux multi-fibres

La compréhension des propriétés mécaniques des matériaux fibreux a bien évolué depuis les travaux de van Wyk [107], qui a développé le premier modèle faisant le lien entre le comportement microscopique des fibres et la réponse macroscopique du milieu.

Par certains aspects, la mécanique des milieux fibreux peut être approchée de celle des poudres, ainsi que celle des mousses : un matériau fibreux peut être assimilé à une mousse ouverte lorsque les contacts entre fibres sont forts/liés, alors que les frottements entre fibres dans les milieux fibreux non cohésifs sont plus en lien avec les mécanismes de réarrangements frottants observés dans les milieux granulaires.

Dans ce paragraphe, nous allons nous pencher plus précisément sur les éléments susceptibles de modifier le comportement mécanique des milieux fibreux : la nature des fibres, la densité relative, le diamètre des fibres, et la nature des contacts entre fibres.

I.4.a. Phénoménologie dans le cas de milieux fibreux non cohésifs

Un certain nombre d'observations génériques peuvent être formulées sur l'aspect des courbes de contrainte-déformation tirées d'essais mécaniques de compression sur les milieux non cohésifs. Ceci est illustré sur la figure 1.5 [79] : quel que soit le matériau constituant les fibres et leur agencement, il existe une importante hystérésis entre la charge et la décharge ainsi qu'une déformation rémanente importante. Les niveaux de contrainte atteints sont en général plus faibles que ceux observés sur les mousses faites du même matériau et les déformations atteintes sont très importantes (comparées aux milieux denses).

L'existence d'une hystérésis importante entre la charge et la décharge était déjà no-

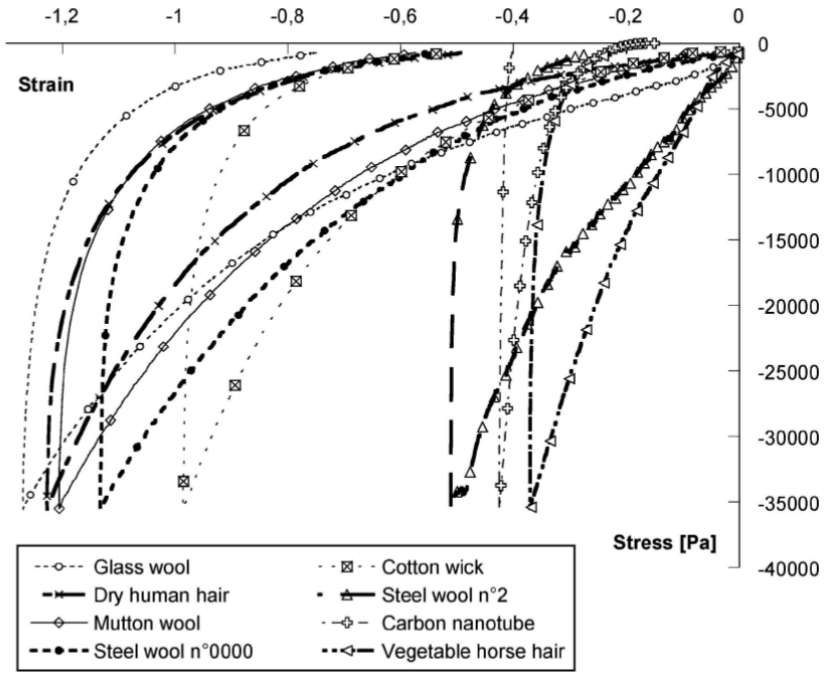


Figure 1.5 Essais de compression œdométrique sur différents milieux fibreux, d'après Poquillon et collab. [79].

tée par van Wyk [107]. Comme le montre la figure 1.6 par Poquillon et collab. [79], l'hystérésis varie significativement entre le premier cycle de compression/décompression et les suivants. L'explication donnée est la mise en place, lors du premier cycle, de la mésostructure par de forts réarrangements, alors que les cycles suivants suivent un chemin privilégié.

Une mesure de la conductivité, toujours par Poquillon et collab. [79], montre que, comme cela a été remarqué pour la réponse mécanique (figure 1.6), il existe une forte modification de la microstructure lors du premier cycle de compression-décompression, puis qu'elle se stabilise et n'est plus beaucoup modifiée lors des cycles suivants. La variation de conductivité est en grande partie due à la variation du nombre de contacts au sein du milieu.

Une autre particularité de certains matériaux fibreux lors de leur sollicitation mécanique provient de leur coefficient de Poisson : il a été montré par Hall et collab. [42] que le coefficient de Poisson d'un papier de nanotubes peut être modifié selon l'agencement et la nature des fibres utilisées (nanotubes simples ou multi-parois), afin de donner au milieu un coefficient de Poisson pouvant aller de valeurs positives (0.1 environ), à des valeur négatives (-0.2, comportement auxétique), comme illustré à la figure 1.7.

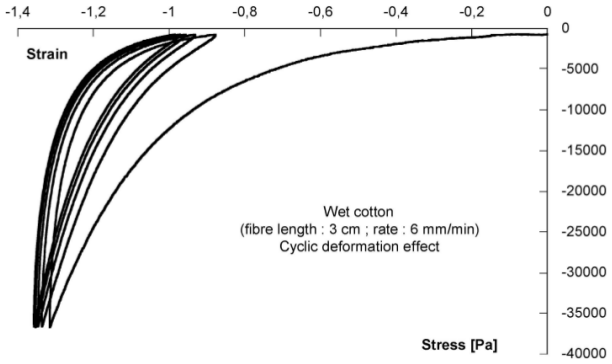


Figure 1.6 Poquillon et collab. [79] montrent la mise en place d'un chemin préférentiel lors de la première charge d'un milieu fibreux.

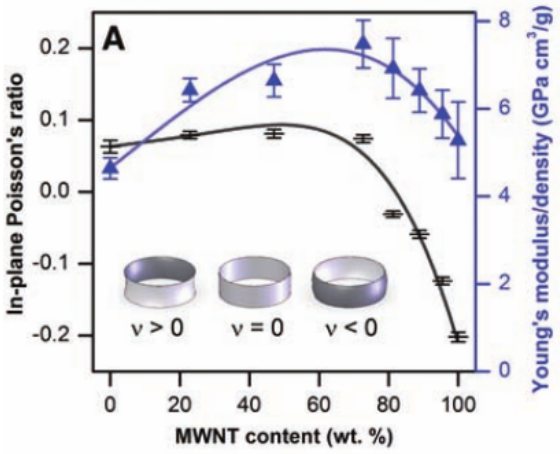


Figure 1.7 Évolution du coefficient de Poisson, en fonction de la teneur en nanotubes à parois multiples, d'après Hall et collab. [42].

I.4.b.Effet de la densité relative

Masse et collab. [67] ont montré que pour une laine d'acier, le module d'Young augmente suivant une loi puissance, dont l'exposant est différent selon la masse surfacique initiale. Comme l'ont fait van Wyk [107], Toll [100], Rodney et collab. [86] ou Durville [29] avant eux, Masse et collab. [67] lient la contrainte à la densité du matériau en utilisant la relation (1.1), issue du travail de van Wyk [107],

$$\sigma = kE_f(\phi^n - \phi_c^n) \tag{1.1}$$

avec k un paramètre prenant en compte la géométrie des fibres dans le matériau (orientation, contraintes), E_f le module d'Young de la fibre, ϕ la densité, n un exposant prenant en compte l'arrangement des fibres (3 pour une géométrie 3D aléatoire

et 5 pour une géométrie aléatoire 2D). La valeur critique de la densité notée ϕ_c représente la densité à partir de laquelle la contrainte mécanique est non-négligeable, *i.e.* la densité de **percolation mécanique** : en deçà de cette densité, la résistance du matériau est suffisamment faible pour être assimilée à une contrainte nulle.

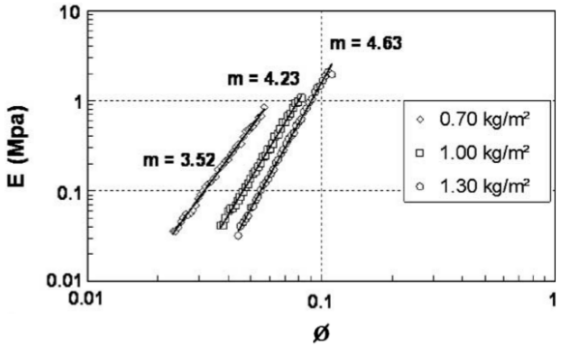
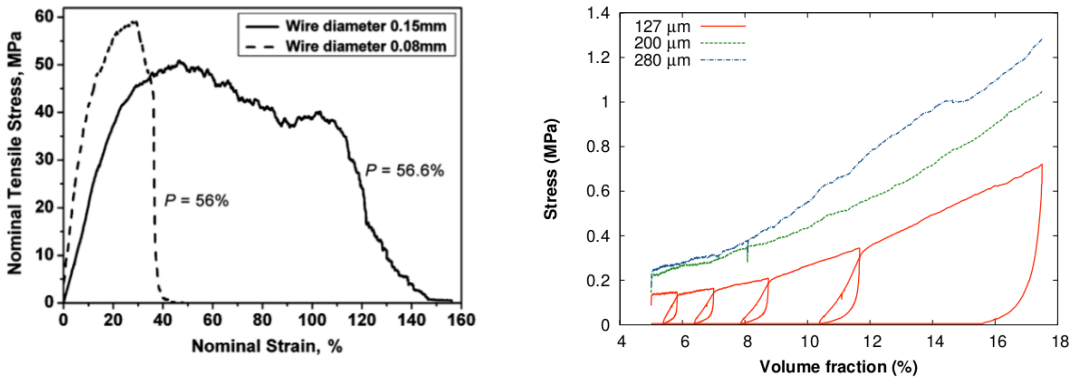


Figure 1.8 Effet de la densité ϕ sur le module d'Young E de laines d'acier, d'après Masse et collab. [67].

Cette notion de densité critique a été étudiée par Rodney et collab. [86] puis Barbier et collab. [12] lors de simulation de fibres courtes par éléments discrets. Il en ressort que la densité critique permettant la percolation mécanique correspond à une mésostructure présentant 8 contacts fibre-fibre par fibre dans un empilement de fibres courtes droites aléatoire 3D.

I.4.c.Effet de l'élancement de la fibre

Une autre façon de modifier le comportement d'un matériau fibreux consiste à modifier l'**élancement de ses fibres**. Des exemples issus de la littérature et donnés en figures 1.9a et 1.9b montrent que, toutes choses égales par ailleurs (*ie.* à densité initiale identique), la contrainte maximale varie avec la diminution de l'élancement du fil constitutif du matériau, sans pour autant qu'un sens ne se dégage. En effet, sur la figure 1.9a, la contrainte maximale diminue avec le diamètre, alors que c'est l'inverse sur la figure 1.9b. Cependant, d'autres essais [87], en simulation, donnent une variation faible de la contrainte de compression d'un matériau fibreux avec la variation de diamètre. Il apparaît donc que la variation de diamètre du fil constitutif du milieu fibreux n'a pas d'effet dont le sens soit défini ; il conviendra donc de le regarder au cas par cas. Cet aspect du comportement mécanique des milieux fibreux avait déjà été remarqué par van Wyk [107] qui n'a pas utilisé de diamètre de fibre dans sa loi de comportement, comme cela sera développé plus en détails en sous-section I.6.



(a) (b)

Figure 1.9 Effet du diamètre de fil sur la mécanique dans un milieu fibreux à longueur de fibres constante (a)d'après He et collab. [43] : titane prédéformé et fritté, constitué de fibres longues (b)d'après Courtois [24] : monofilament long en acier inoxydable, sans lien entre fibres.

I.4.d.Importance des contacts fibre-fibre

Comme cela a été vu précédemment, le nombre de contacts fibre-fibre est très important dans la mécanique des milieux fibreux. En revanche, pour une même mésostructure, l'**état de surface** va être d'une importance capitale, comme pour les milieux granulaires ([84],[89]). En effet, quel que soit le mécanisme (frottements coulombiens ou newtoniens), plus l'état de surface (mesuré par la rugosité) des fibres sera mauvais (importante rugosité), plus la force nécessaire pour créer un déplacement sera importante.

Dans le cas extrême où il existe des liens forts entre fibres, il a été montré par Masse et Poquillon [66] (figure 1.10) que la présence de liens bloquants entre fibres rend les matériaux fibreux plus rigides. Ceci est dû au fait qu'avec cette mésostructure, une partie des contacts ne peut plus glisser lors de la compression. En effet, une partie des fibres sollicitées en flexion en l'absence de liaisons vont l'être en torsion et en traction et les fibres ne vont plus pouvoir se réarranger comme elles l'auraient fait dans un milieu non lié, comme l'a montré Masse [68].

Il est aussi à noter que la présence de liens forts implique un module d'Young initial plus important à la charge, ainsi qu'une contrainte supérieure dans les premiers stades, comme illustré à la figure 1.10 par Masse et Poquillon [66]. Les liens permettent aussi à un milieu fibreux d'avoir une tenue en traction, ce qui n'est pas le cas des milieux multi-fils sans liens ni enchevêtrements forts (comme les tissus ou les câbles).

Une dernière conséquence de cette modification mésostructurale apparaît lors de la compression : ces liaisons ont tendance à se briser, entraînant un adoucissement du

matériau dès la sortie du domaine élastique, alors que le matériau non lié subira les réarangements avant que les fibres ne se bloquent et augmentent ainsi drastiquement la réponse mécanique. Cette dernière caractéristique varie selon la force du lien et est donc à vérifier au cas par cas.

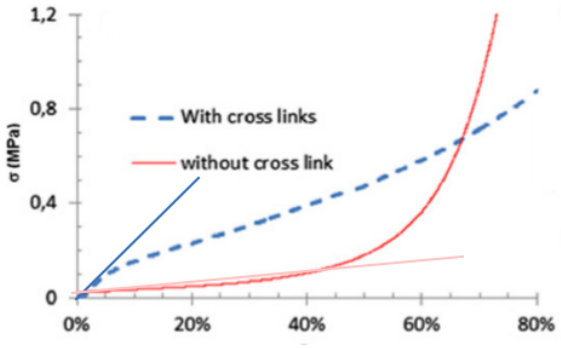


Figure 1.10 Effet de la présence de ponts entre fibres dans un milieu fibreux 3D aléatoire de fibres de carbone (d'après Masse et Poquillon [66]) lors d'essais de compression.

I.4.e.Effet de la nature de la fibre

Contrairement à ce qui existe pour les milieux denses, les tendances principales observées sur le comportement mécanique des milieux fibreux ne sont en général pas ou peu impactées par la nature du matériau constitutif de la fibre dans les premiers stades d'un chargement mécanique (*cf.* figure 1.11). Ceci est essentiellement lié au fait que dans ces régimes, les fibres se réorganisent et sont essentiellement déformées élastiquement. Par contre, aux fortes déformations, la nature des fibres et leurs mécanismes de déformation au delà de l'élasticité jouent un rôle important sur la réponse macroscopique du milieu fibreux. Ceci est illustré sur la figure 1.11 qui montre en effet que dans les premiers stades de la compression d'un milieu fibreux, fibres fragiles et ductiles ont le même comportement une fois normalisé par le module élastique de la fibre. Des stades de déformation plus avancés montrent des différences notables entre des fibres ductiles (élasto-plastiques par exemple) et fragiles, en particulier à cause de la plastification ou de la rupture de fibres.

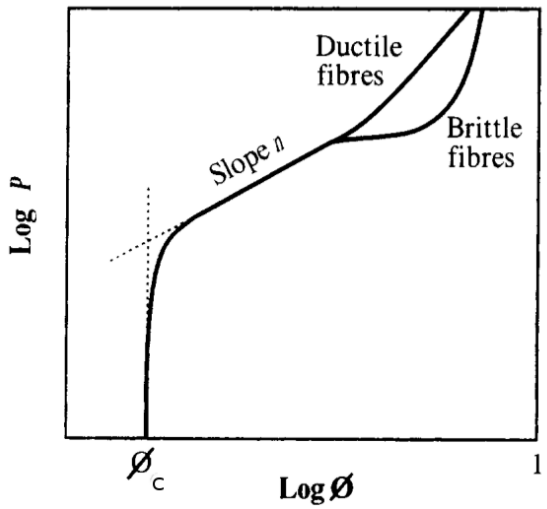


Figure 1.11 Effet de la nature de la fibre sur le comportement mécanique en charge lors d'une compression, d'après Toll [100]. P est la contrainte axiale de compression, ϕ la densité relative du milieu et ϕ_c la densité relative de percolation mécanique.

I.4.f.Conclusion

Les milieux fibreux multi-filaments sont des milieux architecturés qui présentent une large palette d'applications et de possibilités. En faisant varier les différents paramètres mésostructuraux de ces matériaux (densité relative, élancement de la fibre, nature des contacts), il est possible d'adapter ces possibilités à l'utilisation que l'on souhaite en faire.

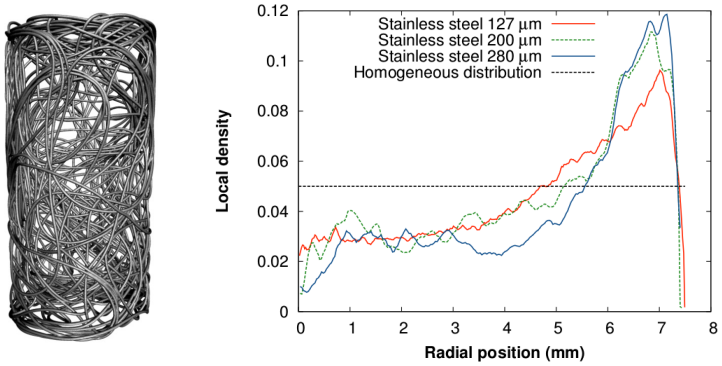
Cependant, les milieux multi-fibreux présentent des inconvénients comme la nécessité de créer des liens forts ou de devoir générer des frottements importants entre les fibres afin de donner une cohésion au milieu. Une solution existe afin de pouvoir créer des milieux fibreux cohérents mais ne nécessitant ni liens ni frottement importants. Pour cela, il est possible de n'utiliser qu'une fibre pour créer un matériau dit auto-enchevêtré, comme nous allons maintenant le voir.

I.5.Mécanique des milieux auto-enchevêtrés

Les matériaux fibreux sont, comme nous avons pu le voir, très divers et recèlent encore de nombreuses propriétés à mieux comprendre. Les milieux nous intéressant plus précisément ici sont les milieux fibreux auto-enchevêtrés, de par leur mise en œuvre intéressante et leurs propriétés remarquables. Nous allons nous pencher de plus près sur ces structures 3D constituées d'un fil auto-enchevêtré qui font à l'heure actuelle l'objet d'un nombre restreint de recherches.

I.5.a.Fibres initialement droites

Les milieux constitués de fibres initialement droites sont en général des milieux dont les fibres présentent un rayon de courbure moyen à l'équilibre proche de celui du contenant ou de la matrice ayant servi à la mise en forme. Un premier exemple de matériau fibreux auto-enchevêtré consiste en un simple fil enroulé sur lui même (comme peut le faire une pelote de laine) et dont la géométrie finale est par exemple donnée par une étape de compression en moule fermé. Cependant, comme les travaux de Courtois [24] ont pu le montrer (figure 1.12), si aucune précaution de mise en forme n'est prise ou si le matériau constitutif du fil n'est pas "assez" élastoplastique, la mésostructure de ces échantillons est très hétérogène, en particulier pour des faibles densités (effet "nid de poule" ou "wall effect"), car afin de minimiser sa courbure, la fibre a tendance à se déplacer vers l'extérieur de la structure.



(a) (b)

Figure 1.12 (a) Image 3D d'un échantillon monofilamentaire à fibre d'acier inoxydable initialement droite (b) porosité de mono-filaments enchevêtrés en fonction de la position selon le diamètre de l'échantillon et du diamètre de la fibre, d'après Courtois [24].

Pour mieux comprendre les mécanismes d'enchevêtrement de fils initialement droits introduits dans une cavité, Stoop et collab. [95] ont réalisé des expériences et des simulations en changeant la rigidité en torsion des fibres, leur limite d'élasticité en flexion et le coefficient de friction aux contacts : comme l'illustre la figure 1.13, lorsque l'on insère une fibre dans une cavité en bloquant sa rotation, on force la fibre à se déformer par une combinaison de courbure et de torsion dont l'optimum correspond à une fibre aléatoirement enchevêtrée dans l'ensemble de la cavité, alors que si la fibre peut tourner sur elle-même, ce qui annule toute déformation par torsion, la fibre se retrouve essentiellement sur la paroi de la cavité.

De même, il a été montré par Stoop et collab. [96] que la mésostructure d'un fil introduit dans une cavité plane (dans cette étude par deux orifices) va dépendre prin-

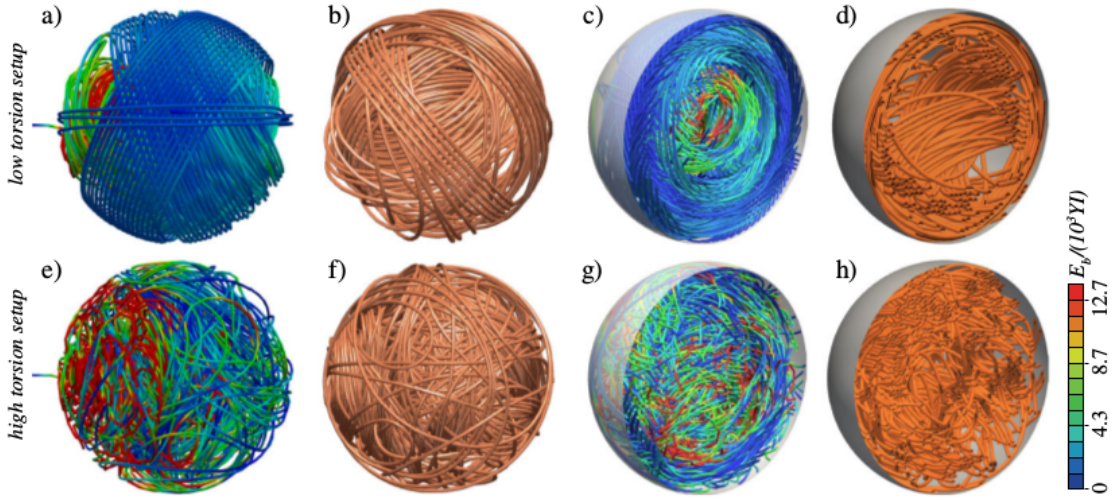
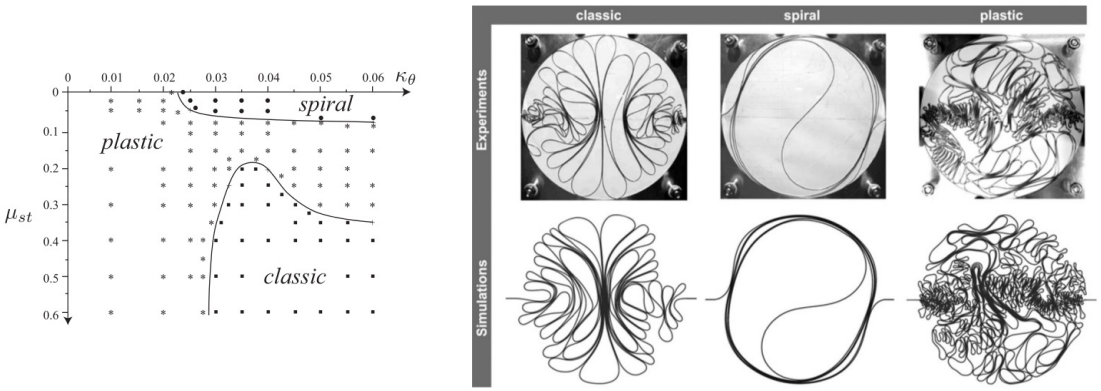


Figure 1.13 Mésostructures obtenues en remplissant des cavités sphériques avec des fils. La partie haute représente une microstructure où le fil n'est pas sollicité en torsion, alors que le bas représente le remplissage d'une cavité avec blocage de la rotation du fil, d'après Stoop et collab. [95] a), c), e) et g) sont des visualisations de simulations et b), d), f) et h) des tomographies. c), d), g) et h) sont des coupes de a), b), e) et f).

cipalement de deux paramètres : le coefficient de friction (μ_{st}) et la limite d'élasticité en courbure du fil (κ_θ). Il est ainsi possible de définir un diagramme de phases dans lequel les couples coefficient de friction-limite élastique en courbure sont associés à un type de mésostructure (figure 1.14). Le même raisonnement que précédemment peut être appliqué au cas 3D, avec en plus de la torsion, les frottements qui vont ajouter une contrainte au système : pour obtenir des structures aléatoires homogènes, il est nécessaire d'introduire d'autres termes de déformation que la courbure, en l'occurrence la torsion ou la friction.

Un autre point important des milieux auto-enchevêtrés à fibre droite est le fait qu'ils sont dépendants du conteneur dans lequel ils ont été mis en forme : sans lui et en l'absence de relaxation des contraintes internes dans les fibres (comme par exemple par traitement thermique ou par plasticité des fibres), les fils se déploient et retrouvent leur forme originelle. Afin de parer à cette potentielle évolution, il est possible d'utiliser des fils élastoplastiques à basses limites d'élasticité et ductiles, ou de fritter les fils entre eux, avec quelques conséquences sur le comportement mécanique du milieu : raideur accrue, risque d'endommagement des liaisons, ce qui conduit globalement à un comportement différent (figures 1.10 et 1.15).

Ces milieux frittés ont été l'objet d'un certain nombre d'études, dont celles de Liu et collab. [57, 58, 59, 60], qui présentent des travaux sur des monofilaments d'acier en fibres droites frittées. Ces matériaux sont soumis à différents types de sollicitation :



(a) **(b)**

Figure 1.14 Diagramme de phase (a) des mésostructures (b) obtenues par expérience et par simulation lors de remplissage de cavités planes, d'après Stoop et collab. [96].

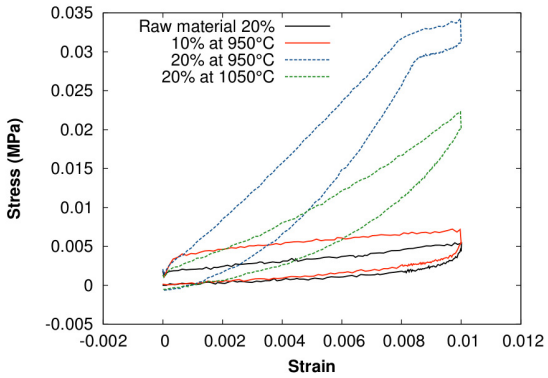


Figure 1.15 Effet du frittage SPS sur différentes porosités de monofilament à fibres droites en acier en compression, d'après Courtois [24].

traction, compression, torsion et résistance aux impacts. La densité joue des rôles semblables pour la compression, la contrainte, la résilience et le module de torsion. Dans tous ces cas, la résistance est plus importante pour un matériau plus dense. Dans chacun de ces essais, la fibre subit un important nombre de ruptures, tant au niveau des liens entre fibres que dans la fibre elle-même.

Les travaux de Qiao et collab. [82, 83] sur des milieux identiques réalisés en 316L (acier inoxydable) montrent que les déformations de ces milieux ne sont pas homogènes et présentent des bandes de cisaillement importantes. Ces éléments montrent bien que les matériaux enchevêtrés monofilamentaires sont très dépendants du procédé de mise en forme et plus précisément de leur histoire mécanique.

Afin de parer à ces problèmes d'inhomogénéité et de relaxation, une approche a été proposée et sera explorée dans la section suivante : enchevêtrer des ressorts, ce qui

a l'avantage de créer de nombreux contacts initiaux et de solliciter des déformations de torsion dans la fibre.

I.5.b.Ressorts auto-enchevêtrés

Une solution proposée par Tan et collab. [98] consiste en une architecture intermédiaire du fil : le fil (d'aluminium ici) est déformé plastiquement sous forme d'un ressort avant d'être enchevêtré. De cette façon (figure 1.16), le milieu créé est globalement aléatoire mais localement quasi ordonné, tout en ayant une tortuosité telle que le fil puisse s'enchevêtrer et se bloquer lui-même aisément.

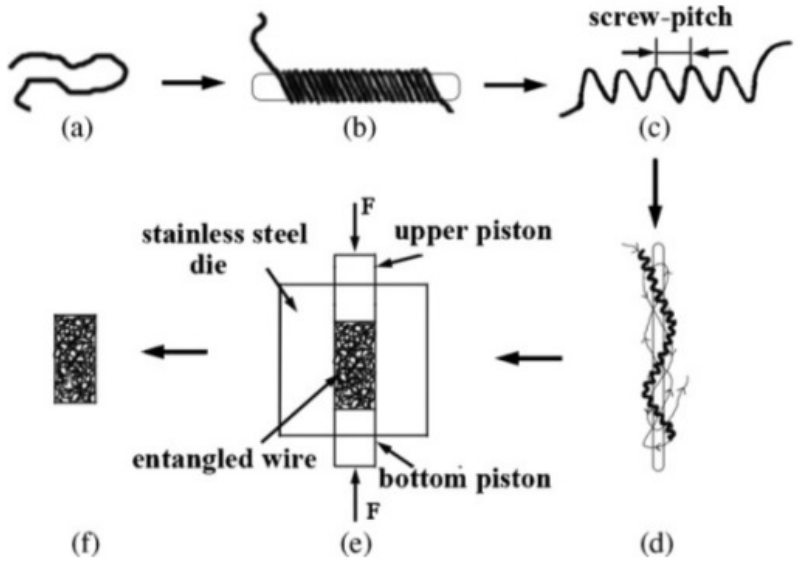


Figure 1.16 Procédé de mise en forme basé sur la déformation plastique de fils d'aluminium proposé par Tan et collab. [98].

La mésostructure issue de ce procédé a été caractérisée par coupe d'échantillon [98] et par tomographie (courbe verte sur la figure 1.17), avec dans les deux cas une mésostructure plus homogène que celle obtenue pour l'enchevêtrement d'un fil droit. Cependant, Liu et collab. [61] ont aussi pu montrer (figure 1.18) que, toutes choses égales par ailleurs, le fil pré-déformé a une contrainte deux fois inférieure à celle du même matériau à base de fil droit.

Une série d'études en compression et flexion sur ces milieux fibreux frittés à base de fils de titane, par He et collab. [44] et Jiang et He [48], a montré que la présence de liens entre les fils sans frittage (qui impacte la mécanique des fils par traitement thermique) mais avec du PMMA donne une contrainte plus importante que celle obtenue pour un milieu non lié, avec une différence de comportement global plus marquée pour les hautes déformations en compression. À noter aussi que l'ajout de matière pour les liens entre fibres n'a pas significativement modifié la porosité du

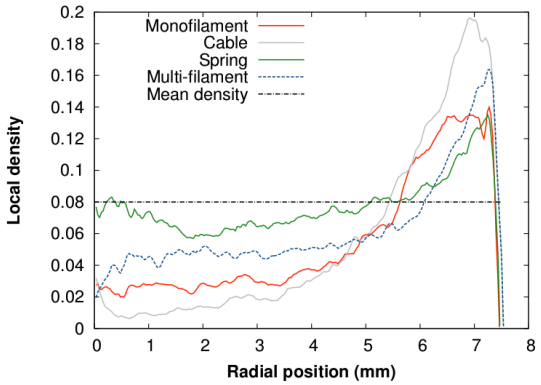


Figure 1.17 Profils de densité de différents procédés de mise en forme de milieux fibreux, caractérisés par micro tomographie, d'après Courtois [24]. Le profil le plus proche de la densité moyenne ("spring") est celui d'un fil prédéformé et enchevêtré.

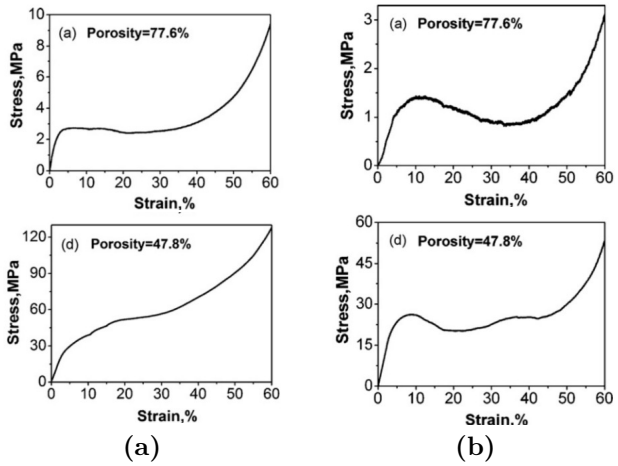


Figure 1.18 Effet de la déformation préalable du fil : (a) fil droit comprimé en matrice (b) fil préalablement formé en hélice puis comprimé en matrice, (a) et (b) sont ensuite frittés, d'après Liu et collab. [61].

milieu final (figure 1.19). Ces milieux mettent en avant une déformation localisée avant rupture (figure 1.20), en compression ainsi qu'en flexion, comme l'ont montré Jiang et He [48].

D'autres études sur des milieux identiques mais non frittés à base de fils en superalliage base nickel montrent des propriétés intéressantes pour des applications en absorption de vibrations, avec des analyses mécaniques dynamiques donnant comme facteurs principaux influant la réponse : la force dynamique appliquée, et la contrainte statique [109]. Le facteur de perte est le plus important sous grand chargement mécanique dynamique et plus particulièrement à faible fréquence (0.30 sous quelques

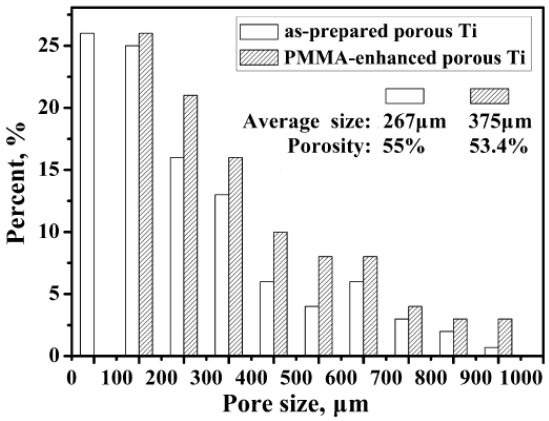


Figure 1.19 Effet de l'ajout de liens en PMMA sur la porosité et la granulométrie de fils autoenchevêtrés en titane, d'après Jiang et He [48].

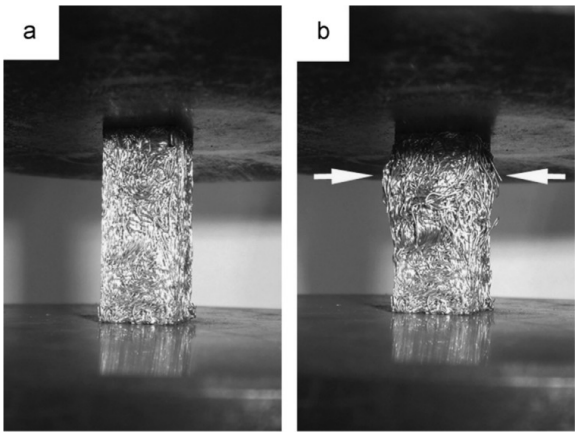


Figure 1.20 Localisation de la déformation lors d'essai de compression sur un milieu monofilamentaire avec lien interfibre en PMMA (a) état initial (b) état final, d'après He et collab. [44].

Newtons à 10 Hz contre 0.25 à 100 Hz).

D'autre part, l'étude de compression statique de Zhang et collab. [108] montre que pour des densités assez faibles (17 à 27%), le module d'Young de ces matériaux est très faible (10 MPa maximum), avec un facteur de perte de l'ordre de 0.11 à 0.18.

Ces milieux prédéformés peuvent aussi présenter un comportement volumique particulier : lors de la sollicitation en traction, le matériau va subir une expansion radiale, ils sont donc auxétiques, ce que He et collab. [45] imputent par le biais d'un modèle de ressort simple à la rotation des spires du ressort au sein du matériau (figure 1.21). Ceci semble être un cas particulier de la procédure de fabrication de milieux autoenchevêtrés de Tan et collab. [98] dans le sens où l'étape d'ouverture des spires peut être limitée (étape (c) de la figure 1.16), ce qui peut conduire à des spires inclinées

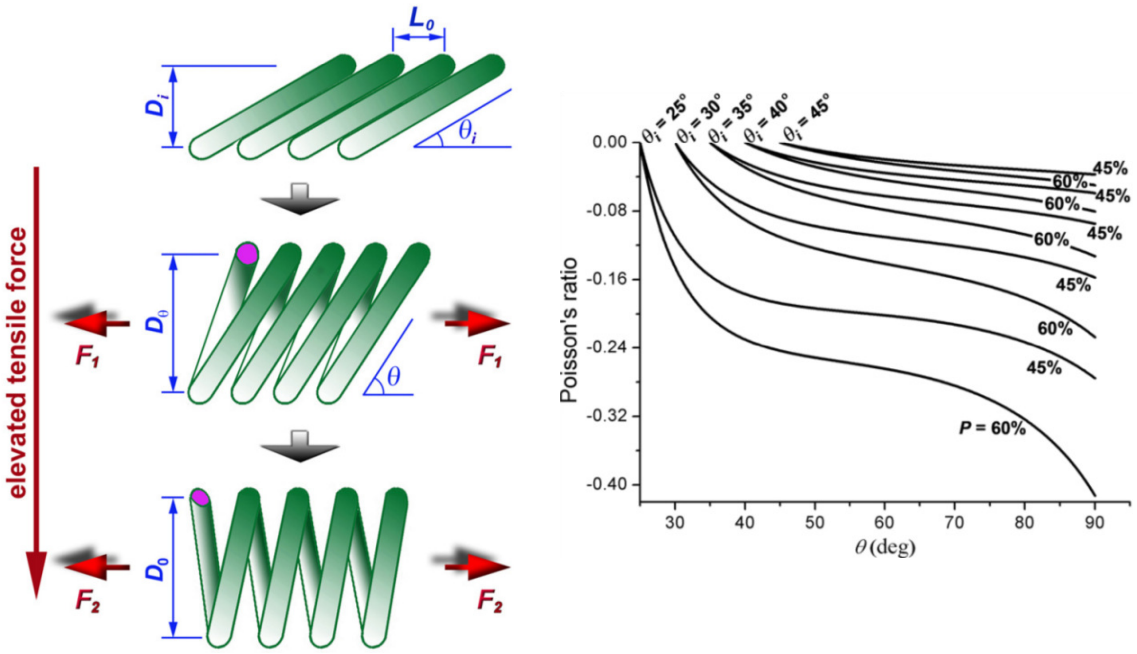


Figure 1.21 (a) Mécanisme de déploiement des spires de l'enchevêtrement entraînant une augmentation de volume du matériau et (b) calcul de l'effet engendré sur le coefficient de Poisson en fonction de l'angle initial des spires θ , d'après He et collab. [45].

par rapport à l'axe du ressort. Le modèle de He et collab. [45] prévoit aussi une très forte dépendance à la microstructure de base de l'échantillon : l'angle initial que les spires forment avec l'axe de l'hélice ainsi que la porosité semblent être des facteurs majeurs de cette analyse.

I.5.c.Conclusion

Les milieux monofilamentaires présentent l'avantage (i) d'avoir une résistance en traction sans nécessiter de liens forts entre fibres, ce qui leur permet de se réorganiser au cours de leur déformation (ii) d'être particulièrement adaptables. La solution que nous allons utiliser se basera sur des fibres pré-déformées en forme de ressort car, comme nous l'avons vu ici, les milieux monofilamentaires droits ont le désavantage d'être très inhomogènes. Ce choix se fera cependant au détriment de la résistance mécanique qui est plus faible dans le cas de fibres pré-déformées.

I.6.Modélisation des milieux fibreux

Afin de pouvoir prédire les mésostructures et le comportement mécanique des milieux fibreux, des modèles analytiques puis numériques ont été développés. Nous allons brièvement en passer quelques uns en revue. Ces modèles permettent de relier les paramètres les plus importants des milieux fibreux, *i.e.* les descripteurs de leur mésostructure à leurs mésomécanismes de déformation afin de prévoir leurs propriétés macroscopiques, voire de concevoir de nouveaux types de milieux, sans avoir à réaliser de campagnes d'essais expérimentaux.

I.6.a.Modèles analytiques

Il existe deux types de fractions volumiques critiques : géométrique et mécanique. Ces deux fractions volumiques critiques sont représentatives de changements dans la mésostructure : à partir de la percolation géométrique, il existera un chemin interconnecté entre les extrémités du matériau, alors que la percolation mécanique marque l'apparition d'une réponse mécanique. Ces points vont ici être expliqués puis liés à la mécanique globale des milieux fibreux. Nous nous intéresserons aussi aux travaux de modélisation de mésostructures et de mécanique au delà de ces densités critiques, car la majorité des milieux fibreux utilisés et étudiés se situent dans ces plages de fraction volumique de fibres.

i)Modèles de mésostructure

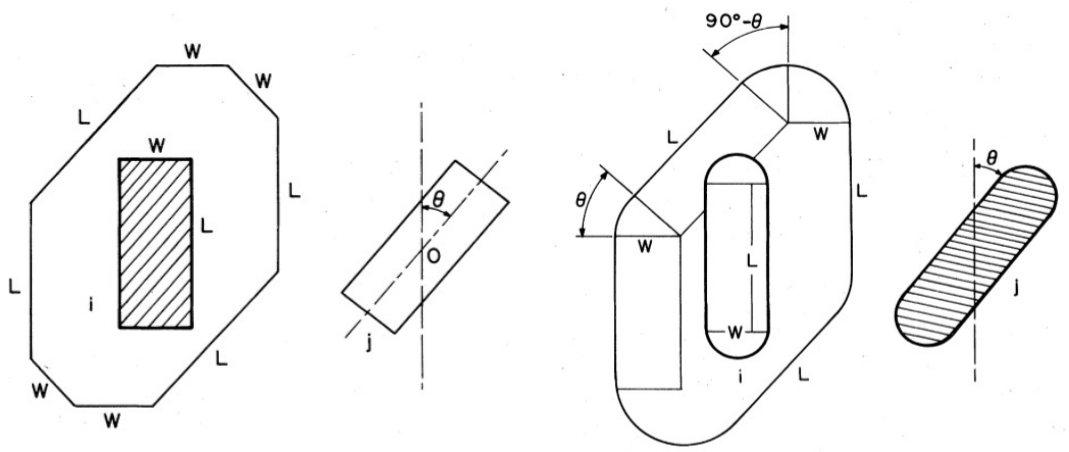
Les modèles analytiques nécessitent une mésostructure sur laquelle s'appuyer. Pour cela, un certain nombre d'hypothèses sont faites en amont de la mise en place du modèle proprement dit. Dans les modèles que nous présentons ici, le milieu est souvent décrit comme étant composés de fibres longues non alignées.

Théorie du volume exclu et percolation géométrique

Afin de prévoir la densité critique de percolation géométrique, un modèle dit du volume exclu a été développé.

Le volume exclu représente le volume autour d'une fibre dans lequel, statistiquement, la présence du centre de gravité d'une autre fibre implique que les deux fibres sont en contact. À partir de cette analyse statistique, la percolation géométrique devient facile à mettre en évidence. Par exemple, l'étude par Balberg et collab. [8] donne des formes de volumes exclus en fonction des géométries de fibres ou particules (figure 1.22).

La percolation géométrique est atteinte lorsqu'il existe un chemin de fibres en contact qui permet de passer d'un côté à l'autre du milieu fibreux. Cette valeur critique de la densité peut être trouvée par l'ajout aléatoire de fibres de telle manière à ce qu'elles ne soient pas en contact avec les fibres déjà présentes. Le premier chemin



(a) **(b)**

Figure 1.22 Aire exclue autour d'un cylindre (a) et d'un sphero cyclindre (b) par rapport à des (sphéro)-cylindres orientés d'un angle θ vis-à-vis du cylindre test, d'après Balberg et collab. [8].

traversant le milieu est ainsi obtenu à la densité critique : $\phi_c^{géom}$. Suivant les travaux de Balberg et collab. [9], la densité critique est liée au volume exclu par :

$$\phi_c^{géom} \propto \frac{V_f}{V_{ex}} \text{ qui tend vers } \frac{1}{r} \text{ dans le cas de fibres très élancées} \tag{1.2}$$

où V_f représente le volume des fibres, V_{ex} leur volume exclu et r leur rapport de forme. Le travail de Garboczi et collab. [36] montre plus précisément par simulation sur des fibres longues que le lien entre la densité critique et le milieu fibreux peut s'écrire :

$$\phi_c^{géom} = \frac{k}{r} \text{ avec } k = 0.6 \tag{1.3}$$

Nombre de contacts au delà du seuil de percolation

La mécanique des milieux fibreux est tributaire des contacts entre fibres au sein du milieu ; cela est encore plus vrai au delà du seuil de percolation. Pour pouvoir modéliser cette connectivité au delà de $\phi_c^{géom}$, quelques auteurs ont proposé des extensions des modèles précédents dans le cas de fractions volumiques élevées (Doi et Edwards [27], Ranganathan et Advani [85] et Toll [99]). Le paragraphe suivant en donne les résultats principaux.

Le nombre de fibres moyen par unité de volume $\overline{N_{fv}}$ d'un milieu fibreux est décrit par :

$$\overline{N_{fv}} = \frac{\phi}{l_f \cdot \pi r_f^2} = \frac{4}{l_f \pi d_f^2}\phi \tag{1.4}$$

Pour obtenir une estimation de la connectivité dans les milieux fibreux constitués de fibres droites de diamètre d_f, longueur l_f, élancement r et densité relative ϕ, Toll [99] introduit deux descripteurs mésostructuraux supplémentaires, liés à l'orientation relative des fibres en contact :

$$\begin{aligned} \langle sin\theta \rangle &= \frac{1}{N_f^2} \sum_\alpha \sum_\beta \parallel \mathbf{a}_\alpha \times \mathbf{a}_\beta \parallel \\ et & \\ \langle cos\theta \rangle &= \frac{1}{N_f^2} \sum_\alpha \sum_\beta \parallel \mathbf{a}_\alpha \cdot \mathbf{a}_\beta \parallel \end{aligned} \tag{1.5}$$

où N_f représente le nombre de fibre total, $\mathbf{a}_\alpha$, $\mathbf{a}_\beta$ les vecteurs directeurs des deux fibres et θ l'angle entre les deux fibres α et β. Pour certaines géométries simples, les valeurs de $\langle sin\theta \rangle$ et $\langle cos\theta \rangle$ sont connues : $\langle sin\theta \rangle = \frac{\pi}{4}$ et $\langle cos\theta \rangle = 0.5$ pour un milieu aléatoire à trois dimensions, $\langle sin\theta \rangle = \langle cos\theta \rangle = \frac{2}{\pi}$ pour des milieux aléatoires à deux dimensions et $\langle sin\theta \rangle = 0$ et $\langle cos\theta \rangle = 1$ pour des fibres alignées.

Il est alors possible de calculer le nombre de contacts moyen par fibre :

$$\overline{N_{cf}} = 8\frac{r}{\pi}\phi\langle sin\theta \rangle + 4\phi(\langle cos\theta \rangle + 1) \tag{1.6}$$

Cette équation peut être simplifiée dans le cas de fibres très élancées et peu alignées $\left(8\frac{r}{\pi}\phi\langle sin\theta \rangle \gg 4\phi\left(\langle cos\theta \rangle + 1\right)\right)$:

$$\overline{N_{cf}} \approx 8\frac{r}{\pi}\phi\langle sin\theta \rangle, \tag{1.7}$$

si bien que le nombre de contacts par unité de volume correspond à :

$$\overline{N_{cv}} = \frac{\overline{N_{cf}}}{2} \cdot \overline{N_{fv}} = \frac{16\langle sin\theta \rangle}{\pi^2 d_f^3}\phi^2, \tag{1.8}$$

et la distance moyenne entre contacts $\overline{\lambda}$ est :

$$\overline{\lambda} = \frac{l_f}{\overline{N_{cf}}} = \frac{\pi d_f}{8\phi\langle sin\theta \rangle} \tag{1.9}$$

ii)Modèles mécaniques

Connaissant des estimateurs de la connectivité des mésostructures, il est alors possible d'estimer les propriétés mécaniques d'un milieu fibreux en s'appuyant sur les contacts entre fibres que nous venons de décrire, et les mécanismes de déformation des fibres entre points de contact.

Percolation mécanique

De la même manière que la percolation géométrique correspond au premier passage solide entre deux points d'un milieu, la percolation mécanique correspond à l'apparition d'une réponse mécanique non-nulle. Par des simulations numériques, Garboczi et collab. [36] ont aussi pu montrer que pour la percolation mécanique, la densité critique est :

$$\phi_c = \frac{K}{r} \text{ avec } K = 5.1 \tag{1.10}$$

La percolation mécanique apparaît donc à une densité environ dix fois supérieure à celle de la percolation géométrique, mais dans les deux cas, la densité critique tend vers 0 lorsque les fibres sont plus élancées.

Mécanique au delà du seuil de percolation

Partant de la percolation mécanique telle que nous venons de la décrire, il est possible d'estimer la réponse mécanique du milieu considéré, comme l'a par exemple fait Toll [100] en supposant que les fibres sont uniquement sollicitées en flexion entre points de contact :

$$\sigma = \eta_d \overline{h_{u\ déf} f} \tag{1.11}$$

où η_d représente le nombre "d'unités de déformation" par unité de volume de la structure fibreuse, $h_{u\ déf}$ leur hauteur vis-à-vis de l'axe de compression et f la force supportée par chaque unité de déformation. Dans le cas des structures fibreuses pas ou modérément alignées, Toll propose de choisir les unités de déformation comme des portions de fibres en flexion, comme cela est illustré sur la figure 1.23, dans le cas d'une fibre tortueuse dans une mésostructure 3D (a) et dans le cas d'une fibre essentiellement contenue dans un plan perpendiculaire à l'axe de compression (mésostructure 2D) (b). Dans le premier cas, vanWyk puis Toll supposent que $h_{u\ déf}$ est de l'ordre de la distance entre points de contact λ (*cf.* figure 1.23(a)). Dans le deuxième cas, Toll et Manson [101] préfèrent à juste titre choisir $h_{u\ déf} \approx d_f$. Dans les deux cas,

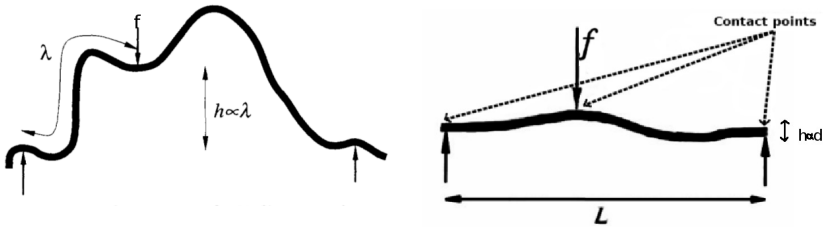
⇒ en utilisant les hypothèses du modèle de tube pour estimer λ (*cf.* équation 1.9),
⇒ en tenant compte de la rigidité des fibres en flexion,
⇒ en imposant des restrictions cinématiques sur le mouvement et la déformation des fibres et des contacts entre fibres,

Toll montre que l'équation 1.11 peut se mettre sous des formes plus explicites.

Dans le cas de milieux à trois dimensions composés de fibres élancées et non alignées, il vient :

$$\sigma = kE_f \left(\phi^3 - \phi_c^3\right) \tag{1.12}$$

avec ϕ_c la densité de percolation mécanique. Ce résultat est identique à ce qu'avait trouvé van Wyk [107]. Dans le cas de milieux à deux dimensions l'équation 1.11



(a) (b)

Figure 1.23 Unité de déformation considérée par l'analyse de Toll [100], dans le cas d'une mésostructure 3D (a) et 2D (b).

devient :

$$\sigma = kE_f \left(\phi^5 - \phi_c^5\right) \tag{1.13}$$

Dans le cas où les fibres sont suffisamment longues la densité critique tend vers 0, il est alors possible d'écrire la contrainte comme :

$$\sigma = kE_f \phi^3 \tag{1.14}$$

pour un milieu à trois dimensions et

$$\sigma = kE_f \phi^5 \tag{1.15}$$

pour un milieu à deux dimensions.

D'un point de vue expérimental, ces expressions analytiques se retrouvent dans les essais de Poquillon et collab. [79] par exemple. Masse et collab. [67] les retrouvent également avec la variation en fonction de la géométrie des milieux : dans le cas de milieux peu denses et donc proches des milieux à trois dimensions, les auteurs trouvent un exposant 3, alors que des milieux plus denses (proches des milieux à deux dimensions) montent à des exposants de 4.5 (*cf* figure 1.24), *i.e.* proche de l'estimation analytique de 5 faite pour ces milieux.

À l'inverse, dans le cas de milieux à fibres très alignées, Latil et collab. [54] trouvent également des lois puissances du type des équations 1.14 et 1.15, mais avec des exposants beaucoup plus importants, entre 7 et 16.

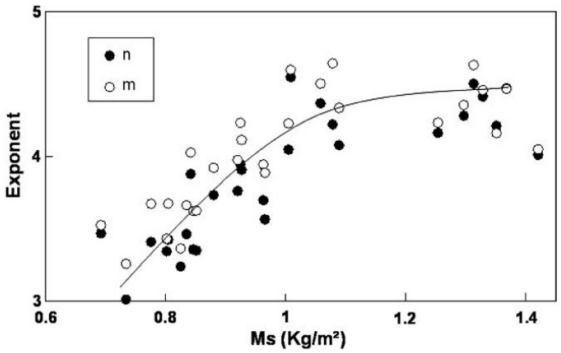


Figure 1.24 Variation des exposants de la loi de van Wyk en fonction de la densité de milieux fibreux. La faible masse surfacique (densité) est proche d'un microstructure à deux dimensions et la plus importante se rapproche d'une microstructure à trois dimensions, d'après Masse et collab. [67]. Les essais sont fait sous chargement uniaxial à vitesse de déformation constante.

I.6.b.Modèles numériques

Les modèles mécaniques numériques dédiés aux structures fibreuses discrètes sont assez récents. Ils permettent de lever de nombreuses hypothèses restrictives, tant sur les mésostructures que sur les mécanismes de déformation et de réarrangement, notamment le déplacement des points de contacts suivant une déformation homogène.

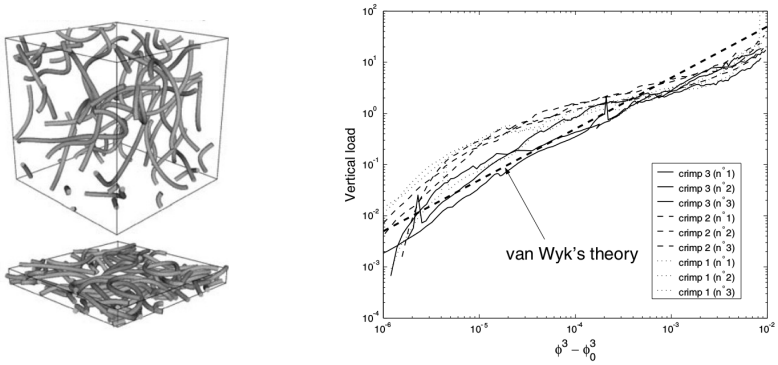
Deux méthodes principales existent pour simuler la déformation de structures fibreuses. Elles sont basées sur des approches différentes : les éléments finis et les éléments discrets. Dans les deux cas, la prise en compte et la gestion des contacts entre fibres est un élément crucial que les éléments finis ont plus de difficulté à prendre en compte que les éléments discrets.

i)Méthodes des éléments finis

La méthode des éléments finis discrétise les fibres en éléments poutres. Dans le cas des matériaux fibreux, les poutres peuvent avoir des degrés de liberté au niveau de leur section droite (qui peut ainsi être déformée), comme par exemple Durville [30], qui propose une simulation où chacune des 336 fibres sont maillées de 20 000 éléments environ.

L'autre élément mis en avant par la méthode proposée par Durville [29] porte sur une définition et une détection rigoureuse des contacts, compliquées par le fait qu'il faille ajouter des éléments intermédiaires entre les différents points de contact, et chacun suivant une loi de comportement complexe décrivant l'interaction entre les fibres.

La cinématique des fibres elles-mêmes est suivie par trois vecteurs : un pour le suivi du centre de la fibre et deux pour définir sa section. Les simulations de compression



(a) **(b)**

Figure 1.25 (a)Visualisation de la simulation réalisée par DURVILLE [29] pour simuler la compression d'un réseau de fibes élastiques et (b) courbes montrant la contrainte en fonction de la densité issues de ces simulations.

de structures fibreuses aléatoires 3D (figure 1.25) montrent une assez bonne corrélation des courbes de chargement avec les travaux de VAN WYK [107], c'est-à-dire l'équation 1.12 ci-dessus.

Cette méthode de calcul est très intéressante pour des fibres dont la section n'est pas constante (dans le temps ou dans l'espace), elle permet de prendre en compte des contacts complexes (comme dans les torons par exemple) et aucune approximation sur la surface gauche de la fibre n'est nécessaire lors de la déformation. En revanche, la méthode des éléments finis nécessite une grande puissance de calcul.

ii)Méthodes des éléments discrets

Une autre possibilité de travail numérique sur les milieux fibreux passe par la méthode des éléments discrets. Cette méthode considère également la fibre comme une poutre (à cinématique simplifiée) et la discrétise en morceaux qui sont ensuite utilisés pour simuler la fibre entière. BERGOU et collab. [13] proposent par exemple un modèle de discrétisation de fibre (poutre élastique de Kirchhoff, *i.e.* inextensible et à section droite rigide et orthogonale à la ligne moyenne des fibres) permettant de réduire le nombre de degrés de liberté du système tout en s'appuyant sur la ligne centrale des fibres.

Ce modèle repose sur la ligne centrale de la fibre ainsi que sur l'abscisse curviligne s et sur un système de repères : un repère matériel lié aux fibres et à leur section droite, un repère de Frenet-Serret décrivant la géométrie curviligne de la poutre et un repère dans lequel la torsion de chacun des éléments est nulle (repère de Bishop). Ces différents repères sont représentés sur la figure 1.26.

Dans ce cadre, la courbure et la torsion se calculent à partir de la rotation du repère matériel le long de la fibre, exprimée dans le repère matériel. Il est ainsi possible de

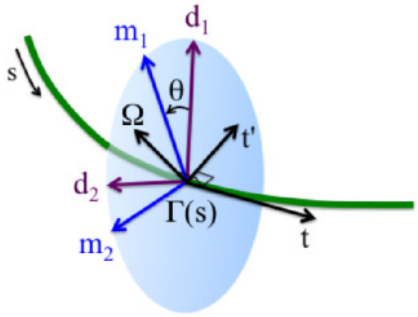


Figure 1.26 Les différents repères utilisés par la discrétisation de Bergou et collab. [13] : $\mathbf{s}$ l'abscisse curviligne, $\{\mathbf{t}, \mathbf{t}'/\|\mathbf{t}'\|, \mathbf{\Omega}/\|\mathbf{\Omega}\|\}$ le repère de Frenet-Serret, $\{\mathbf{m_1}, \mathbf{m_2}, \mathbf{t}\}$ le repère matériel et $\{\mathbf{d_1}, \mathbf{d_2}, \mathbf{t}\}$ le repère de Bishop.

calculer le vecteur $\boldsymbol{\omega}$ représentant la courbure de la fibre :

$$\boldsymbol{\omega} = \begin{pmatrix} \mathbf{t}'.\mathbf{m_1} \\ \mathbf{t}'.\mathbf{m_2} \end{pmatrix}. \tag{1.16}$$

La torsion m peut également se définir comme

$$m = \mathbf{m_1'}.\mathbf{m_2} = -\mathbf{m_2'}.\mathbf{m_1} \tag{1.17}$$

L'énergie de déformation élastique de la fibre est alors fonction de la différence de courbure et de torsion entre l'état actuel et l'état de la fibre (*i.e.* dans sa configuration initiale relaxée) à l'équilibre (ici $\overline{\text{surligné}}$)

$$E_{flexion+torsion} = \frac{1}{2} \int_0^{l_f} \left\{ \alpha \|\omega(s) - \overline{\omega(s)}\|^2 + \beta \left(m(s) - \overline{m(s)} \right)^2 \right\} ds \tag{1.18}$$

Dans le cadre d'une fibre cylindrique, les raideurs de flexion et de torsion α et β sont connues en fonction de constantes géométrique et matériaux de la fibre (Module d'Young E_f, coefficient de Poisson ν_f et diamètre de la fibre d_f) :

$$\alpha = E_f \frac{\pi d_f^4}{4 \times 16}$$

et

$$\beta = \frac{\alpha}{1 + \nu_f} \tag{1.19}$$

Du fait de la définition de l'angle de torsion comme étant l'angle entre le repère

matériel et le repère de Bishop, il est possible de réécrire l'équation 1.18 comme :

$$E_{flexion+torsion} = \frac{1}{2}\int_0^{l_f} ds \left\{ \alpha \|\omega(s) - \overline{\omega(s)}\|^2 + \beta \left(\varphi'(s) - \overline{\varphi'(s)}\right)^2 \right\} ds \qquad (1.20)$$

avec ϕ l'angle entre le repère matériel et le repère de Bishop.

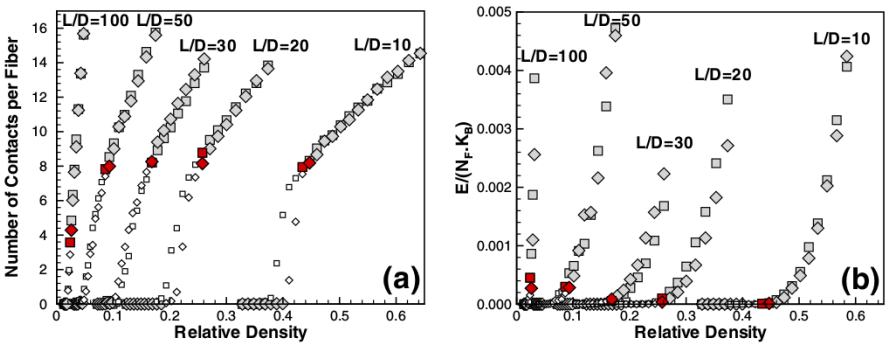


Figure 1.27 Nombre de contacts fibre-fibre par fibre (a) et énergie normalisée par fibre (b), d'après Rodney et collab. [86].

D'autres possibilités de modélisation par éléments discrets incluent le travail de Rodney et collab. [86], où, selon des hypothèses de modélisation similaires, des ensembles de fibres courtes sont compressés de manière isostatique, en l'absence de torsion. Cette étude permet de retrouver les résultats prédits par le modèle analytique du volume exclu : la densité relative à percolation est de 1% environ pour les élancements les plus importants ($\simeq$ 100), contre 45% pour celles à faible élancement ($\simeq$10).

iii)Conclusion

La simulation par éléments discrets est avantagée vis-à-vis des éléments finis par sa rapidité de calcul et la facilité à travailler sur un grand volume de matériau fibreux, mais elle repose sur des hypothèses généralement plus simples, telles le fait que les surfaces perpendiculaires à la ligne moyenne de la fibre restent droites et que la section de la fibre est constante. Il ne faut donc pas opposer les deux méthodes, mais plutôt les voir comme des moyens complémentaires de travailler sur les milieux fibreux. Par exemple, que ce soit par les éléments finis ou par les éléments discrets, les résultats expérimentaux et ceux proposés par les modèles analytiques ont pu être retrouvés, notamment dans les travaux de Rodney et collab. [86], Barbier et collab. [12] ou encore Durville [29] qui donnent un exposant de la loi de comportement de van Wyk proche de 3 pour des milieux aléatoires à trois dimensions.

D'autres résultats ont aussi pu être tirés des simulations sur les milieux fibreux, en particulier le nombre de contacts à la percolation mécanique. Comme Toll [100]

l'avait prévu avec son analyse, le nombre de contacts est fonction de l'élancement des fibres du milieu. Les valeurs numériques obtenues de ces simulations sont 8 pour des fibres courtes ($r < 50$) et 4 pour des fibres plus longues ($r > 100$) d'après Rodney et collab. [86], et respectivement 7 et 3 d'après Williams et Philipse [105].

Les travaux de Barbier et collab. [12] montrent aussi que les frottements aux contacts jouent un rôle sur l'hystérésis entre la charge et la décharge des milieux fibreux : l'augmentation du coefficient de friction sur un ensemble de fibres augmente de façon drastique l'amplitude de l'hystérésis.

I.7.Apports de la micro-tomographie à rayons X

Les simulations numériques sont un bon moyen de s'affranchir des modèles de mésostructure nécessaires à la mise en place de modèles mécaniques analytiques. Il existe une autre solution pour aborder les mésostructures réelles. Les moyens de caractérisation actuels permettent en effet de caractériser finement et en 3D la mésostructure des milieux fibreux par des moyens non destructifs. Le plus adapté à cet usage est sans doute la micro-tomographie à rayons X.

I.7.a.Méthode

L'obtention de données utiles à la caractérisation par tomographie X se scinde en deux parties : l'acquisition et le traitement des images.

i)Acquisition d'images : tomographie X

La tomographie X est basée sur une série de radiographies par rayonnement X (*cf.* figure 1.28) qui sont ensuite introduites dans un algorithme de rétroprojection filtré permettant de reconstruire le volume analysé en trois dimensions. Dans cet algorithme, les différents matériaux sont distingués grâce à la différence de leur propriétés d'absorption aux rayons X. La méthode est explicitée plus en détails dans le chapitre de Peix et collab. [76].

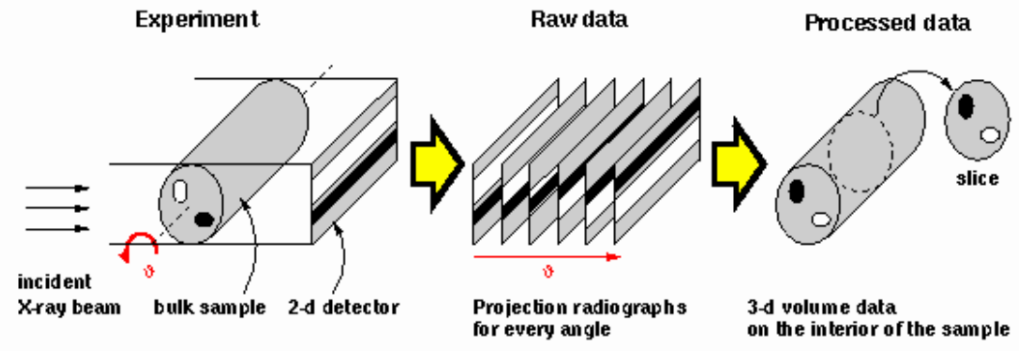


Figure 1.28 Principe de la micro-tomographie X, d'après Courtois [24].

La résolution spatiale du volume reconstruit est dépendante de la combinaison de deux facteurs, le premier étant la résolution du capteur utilisé pour acquérir les radiographies, le deuxième étant le type de source. Alors que sur un montage où les rayons sont parallèles (sources synchrotron) la résolution sera équivalente au grossissement optique (rapport de l'angle de vue de l'image formée par le système optique sur l'angle de vue de l'objet) multiplié par la taille de l'écran, dans le cas d'un faisceau de rayons X conique (appareil de laboratoire), la résolution est égale au grandissement (taille de l'image formée par le système optique sur taille de l'objet) multiplié par la taille de l'écran (Peix et collab. [76]).

Cette résolution peut ainsi varier grandement selon les appareils et les réglages : sur un tomographe de laboratoire, les résolutions sont généralement supérieures au micromètre (cette limite a tendance à diminuer), alors que les grands instruments (synchrotron) peuvent descendre à des résolutions plus fines, jusqu'à 50 nm. Cela se fait cependant au détriment du temps d'acquisition : quelque soit l'appareil, une meilleure résolution est synonyme d'un plus grand temps d'acquisition.

Les temps les plus courts sont accessibles sur des synchrotrons et ont permis de faire des essais mécaniques *in-situ*, en particulier sur des phénomènes extrêmement rapides tels que dans Lhuissier et collab. [56], où le matériau est chauffé et soumis à la traction pendant l'acquisition du volume. Ce type d'essai nécessite des vitesses d'acquisition inférieures à la seconde, alors que d'autres essais comme ceux de Courtois et collab. [25], Ando et collab. [2] ou encore Latil et collab. [54], qui peuvent être interrompus, ne nécessitent pas de temps d'acquisition aussi courts.

Les essais *in-situ* tels que ceux de Badel et collab. [7], Courtois et collab. [25] et Latil et collab. [54] permettent de suivre les fibres lors de la déformation de milieux fibreux sous compression. Il devient ainsi possible de connaître l'évolution de la mésostructure (fibres et contacts) pour la lier à la réponse mécanique macroscopique du milieu fibreux.

ii) Analyse d'images

Les données brutes de tomographie sont des images 3D en niveaux de gris. Afin de pouvoir les rendre utilisables, il est nécessaire de réaliser un travail d'analyse d'images pour faire ressortir les objets pertinents. Dans les travaux sur les milieux fibreux, cela implique de pouvoir séparer les fibres. Les méthodes classiques consistent en une binarisation suivie d'une squelettisation de la phase fibreuse pour ne sortir que son squelette, *i.e.* le réseau des lignes moyennes des fibres et de leur connectivité :

⇒ La binarisation consiste à séparer les différentes phases du milieu hétérogène imagé : en sortie de reconstruction (par rétroprojection filtrée), les niveaux de gris correspondent aux différents matériaux dans l'échantillon. Dans le cas d'un milieu fibreux, en choisissant le seuil à partir duquel les parties de l'image sont en noir ou en blanc, il est possible de ne conserver que les fibres (matière solide) d'une couleur et les porosités d'une autre.

⇒ La squelettisation peut se faire suivant deux grandes méthodes selon que l'on souhaite squelettiser les pores ou les fibres : pour les pores, la technique la plus appropriée est celle dite du "watershed" (l'image est considérée comme une carte de relief, et "inondée", avec la ligne de partage des eaux comme limite entre les deux phases), alors que pour travailler sur les fibres l'amincissement de structures est préféré. C'est cette dernière méthode qui est implémentée dans des logiciels commerciaux d'analyse d'image comme Avizo, même si elle présente quelques inconvénients : interruption de la ligne moyenne, liaison de fibres moyennes aux points de contact et fibres moyennes en dents de scie (figure 1.29). Il est alors nécessaire de développer des algorithmes moins systématiques pour "réparer" le squelette.

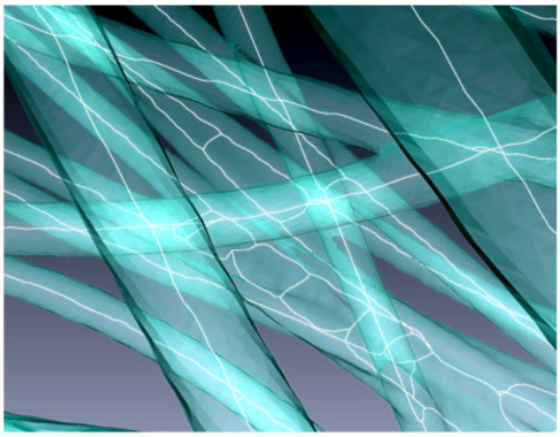


Figure 1.29 Exemple de pontages indésirables entre fibres lors de la squelettisation par Avizo, d'après Courtois [24]. Les fibres sont en semi-transparence et leur squelette en blanc.

La carte des distances euclidiennes est une opération qui consiste à affecter à un voxel d'une phase segmentée (fibre par exemple) une valeur de niveau de gris en fonction de sa distance à la frontière de la phase. Des méthodes telles que celles de Viguié et collab. [104], ou de Latil [53] et Latil et collab. [54] (figure 1.30) qui consistent à calculer la carte 3D des distances sur la phase fibreuse segmentée, refaire une segmentation sur cette carte des distances (pour permettre de séparer les fibres en contact) avant de faire subir à l'image résultante le processus de squelettisation permettent d'obtenir des squelettes évitant les contacts entre fibres.

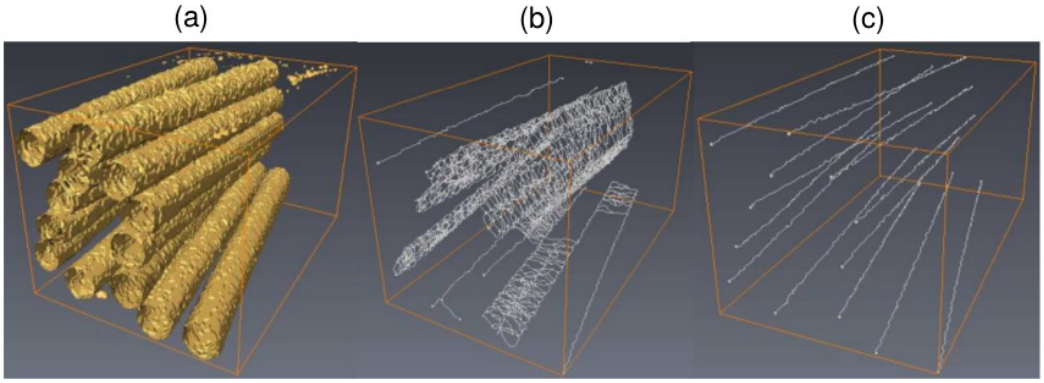


Figure 1.30 Exemple de squelettisation : (a) visualisation 3D des fibres, (b) squelettisation simple, (c) squelettisation après séparation des fibres par seuillage de la carte des distances, d'après Latil [53].

I.7.b.Résultats

La connaissance des mésostructures réelles permet une confrontation à des modèles tels que ceux de van Wyk et Toll et ainsi de vérifier leurs hypothèses. Utilisant les squelettes obtenus à partir des tomographies X, il est en effet possible de réaliser les mêmes analyses que celles utilisées dans les modèles analytiques. La première possibilité qu'offre cette technique est la détermination de la densité, qui peut être faite sur les images après segmentation. En effet, tous les modèles présentés en sous-section I.6 ont pour première hypothèse que la densité du milieu étudié est homogène.

Par exemple, l'étude de Courtois et collab. [25] montre que dans le cas des monofilaments, la microstructure est très hétérogène (effet "nid de poule") et l'accord avec les modèles est mauvais (figure 1.31), alors que l'étude de Masse et Poquillon [66] montre que si leur matériau présente des bandes de différentes densités, chacune des bandes est homogène et sa mécanique semble évoluer de manière semblable à ce que prévoit le modèle de Toll (figure 1.8), ce qui permet ainsi de le vérifier expérimentalement. De même, l'étude de Latil et collab. [54] montre que les modèles de Toll ne s'appliquent pas sur des milieux constitués de fibres droites alignées, puisque les exposants des lois de compaction sont bien supérieurs à ceux prévus dans le modèle, et que le nombre de contacts déterminé par l'image est bien différent de celui proposé par le modèle de tube.

Dans tous les cas, les analyses *in-situ* montrent leur importance en permettant de vérifier et montrer les limites des modèles existants (analytiques comme numériques).

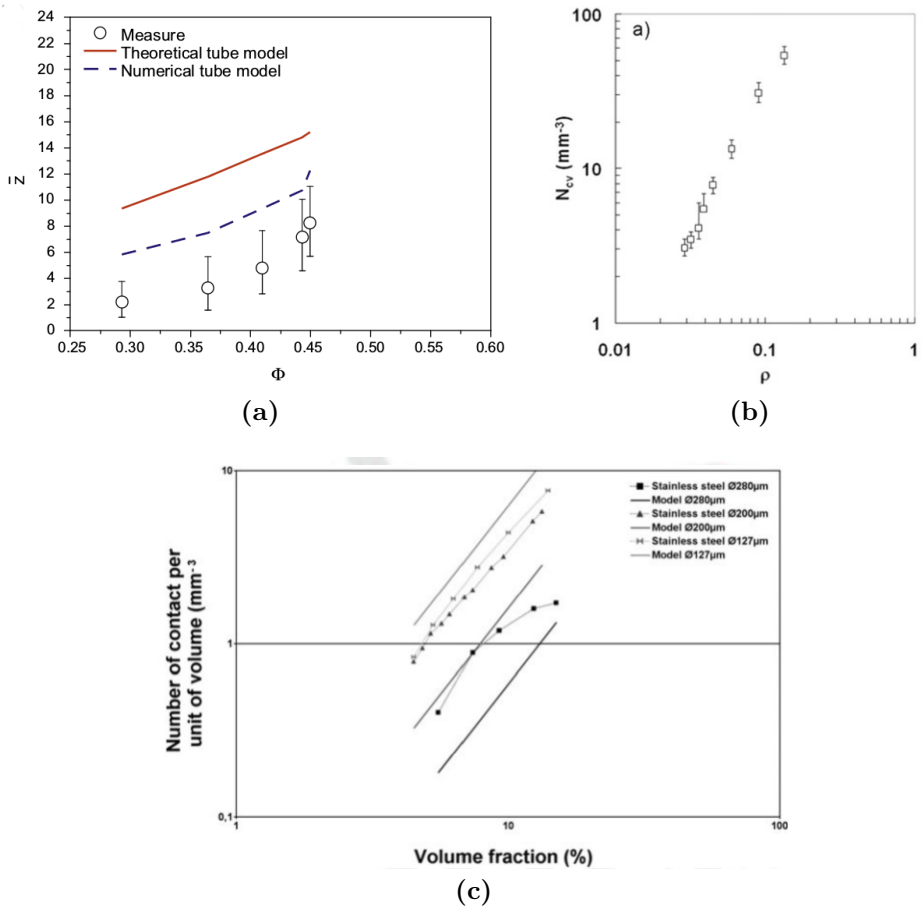


Figure 1.31 Évolution du nombre de contacts mesuré par micro-tomographie X dans (a) un milieu de fibres alignées, d'après Latil et collab. [54] (b) une laine d'acier d'après Masse et Poquillon [66] (c) un milieu monofilamentaire d'après Courtois et collab. [25].

I.8.Conclusion

Les milieux fibreux peuvent être adaptés en faisant varier un certain nombre de paramètres (géométrie, agencement et propriétés mécaniques et physiques des fibres). Les simulations numériques faites à l'échelle des fibres, tout comme les observations faites par imagerie 3D sous chargement sont de parfaits moyens pour comprendre, voire optimiser architecture et mécanique de ces matériaux.

Certaines architectures comme celles des matériaux monofilamentaires auto-enchevêtrés permettent de prendre avantage des nombreuses caractéristiques des milieux fibreux, en particulier dans le cas de monofilaments en forme de ressorts qui présentent l'avantage d'être homogènes dans leur mésostructure, tout en ne nécessitant

pas de liens forts pour être cohésifs.

Cependant, la mécanique de ces structures est encore peu connue et doit faire l'objet d'études afin de pouvoir les utiliser de façon industrielle, en particulier pour des comportements mécaniques spécifiques (faible module d'Young, absorption de vibrations, etc.).

II.Alliages à mémoire de forme

Les alliages à mémoire de forme (AMF) ont été découverts en 1962 lors de recherches sur des matériaux à utilisation aérospatiale. Il s'est avéré que l'alliage quasi-équiatomique de nickel et de titane présentait une microstructure particulière lui permettant de changer de forme en fonction de la température (ferroélasticité), et de pouvoir subir de grandes déformations élastiques sans s'endommager (superélasticité) et dans les deux cas, de recouvrer sa forme initiale sans déformation rémanente notable.

Nous allons maintenant nous pencher sur les origines de ces effets, ainsi que sur quelques utilisations actuelles de ces matériaux.

II.1.Microstructure des AMF de type NiTi

Nous allons nous pencher sur les alliages réagissant à la température et aux chargements mécaniques, en particulier les alliages de type nickel-titane (NiTi), mais il existe d'autres formes, pouvant réagir aux champs magnétiques par exemple. Ces changements de forme sont dus à des changements de phases à l'état solide appelées transformations martensitiques thermomécaniquement activées. Ainsi, à contrainte nulle par exemple, il existe une forme haute température, l'austénite et une forme basse température, la martensite.

II.1.a.Austénite

Au dessus d'une température dépendante de l'histoire thermomécanique du matériau et appelée A_f (pour "austenite finish"), tout l'AMF se trouve dans une structure austénitique, cubique (type CsCl) dans le cas des AMF de type NiTi.

II.1.b.Martensite

En dessous d'une autre température dépendante elle aussi de l'histoire thermomécanique du matériau et appelée M_f (pour "Martensite finish"), l'AMF est dans une structure martensitique, monoclinique. La martensite dans les AMF NiTi se présente sous la forme de 24 variantes orientées ou auto-accommodées, afin de minimiser leur énergie.

II.1.c.Transformation de phase martensitique

Entre les températures M_f et A_f, l'austénite et la martensite coexistent dans le matériau. Par exemple si, toujours à contrainte nulle, on élève la température depuis M_f, la martensite va progressivement disparaître au profit de l'austénite à partir de la température A_s ("austenite start") pour complètement disparaître à A_f. Inversement, si l'on refroidit le matériau à partir de là, l'austénite va progressivement disparaître au profit de la martensite à partir d'une température M_s ("martensite start") jusqu'à M_f.

Le passage entre l'austénite et la martensite est induit par une transformation de phase à l'état solide homogène appelée transformation martensitique. Dans les AMF NiTi, cette transformation est du premier ordre et displacive : elle ne fait pas intervenir de diffusion de la matière, mais seulement des déplacements collectifs des atomes sur de faibles distances (typiquement de l'ordre du dixième de la distance interatomique) et indépendante du temps. Comme cette transformation n'introduit que peu de défauts (comme les dislocations), elle est réversible cristallographiquement, ce qui procure aux AMF leurs propriétés remarquables.

Cette transformation peut être induite par deux éléments principaux : la température, comme nous l'avons déjà vu, et la contrainte mécanique. Il est ainsi possible de représenter ces changements de phase dans un diagramme de phases tel que celui de la figure 1.32.

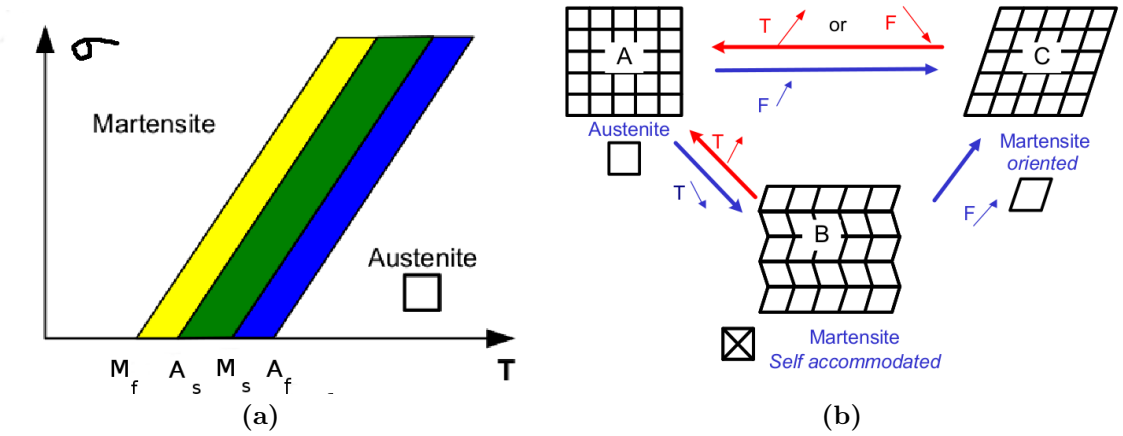


Figure 1.32 (a) Diagramme de phase du NiTi en fonction de la température et de la contrainte mécanique, et (b) représentation des mailles cristallines du NiTi en fonction de la contrainte et/ou de la température (d'après Schlosser [88]).

II.2.Comportement thermomécanique des AMF NiTi

En fonction de la température et de son histoire thermomécanique, le NiTi peut présenter différentes propriétés que nous allons discuter ici.

II.2.a.Superélasticité

Lorsqu'un alliage de NiTi se trouve à une température supérieure à A_f et qu'il est chargé mécaniquement, il présente un comportement superélastique. La courbe de traction classique du NiTi superélastique présente un certain nombre de points remarquables, comme cela est visible sur la figure 1.33 :

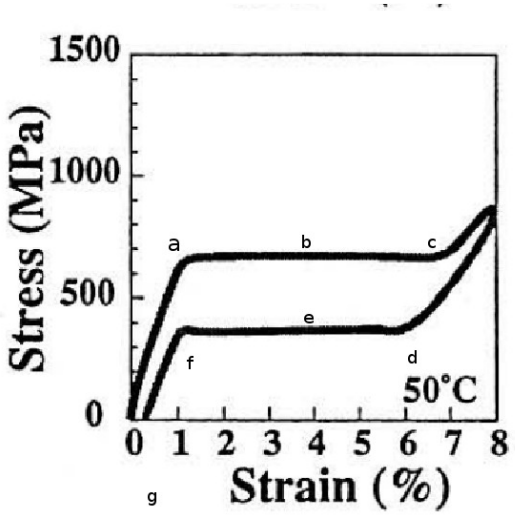


Figure 1.33 Courbe de traction typique d'un NiTi superélastique, d'après Stoeckel et Yu [94].

a) la déformation de début de transformation (plateau) en charge à environ 1%, après une déformation initiale correspondant à l'élasticité de l'austénite

b) la contrainte du plateau en charge, aux environs de 600 MPa, correspondant à la transformation austénite-martensite

c) la déformation de fin de plateau en charge à environ 7%, correspondant à la fin de cette transformation et au début de l'élasticité de la martensite

d) la déformation de début de plateau en décharge à environ 6%, correspondant au début de la transformation inverse martensite-austénite

e) la contrainte en plateau en décharge à environ 400 MPa, marque de la poursuite de cette transfrormation inverse

f) la déformation de fin de transformation inverse en décharge à environ 1% qui est suivi d'une décharge élastique de l'austénite

g) la déformation rémanente inférieure à 1% si le matériau est traité pour être superélastique

Ces mécanismes sont très sensibles à la température, comme cela est particulièrement visible sur des essais de traction effectués à différentes températures, comme le montrent Otsuka et Ren [75] sur la figure 1.34. Sur cette série d'essais de traction, il est bien visible que la transformation de phase a lieu entre 308 et 318K, avec la disparition de la déformation rémanente entre ces deux températures. La caractérisation plus fine du matériau donne en effet $A_f = 313$K. Dans la zone où le comportement est superélastique, on remarque une franche augmentation des contraintes de transformation avec la température. Cette augmentation est en général linéaire et directement liée aux aspects thermodynamiques liés à la transformation martensitique. Les contraintes de transformation suivent une relation de type Clausius-Clapeyron :

$$\frac{d\sigma_{plateau}}{dT} \simeq cste \tag{1.21}$$

Dans les AMF NiTi, cette constante dépend de la composition de l'alliage, de son histoire thermomécanique d'élaboration et de mise en forme, et du type de chargement mécanique appliqué. Par exemple, dans le cas des alliages NiTi riches en Ni, laminés à froid, vieillis ou simplement restaurés à des températures modérées, *i.e.* les alliages utilisés dans les applications biomédicales (et celui que nous utiliserons par la suite), cette constante est de l'ordre de 5 $MPa.\mathrm{K}^{-1}$ en traction simple (Stoeckel et Yu [94] et Otsuka et Ren [75]).

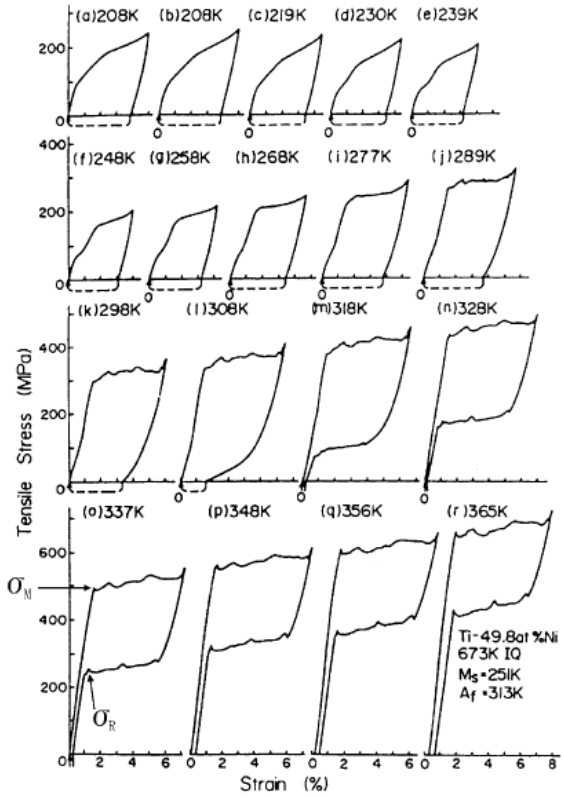


Figure 1.34 Effet de la température sur les comportements du NiTi en traction : la différence entre la ferroélasticité et la superélasticité est visible, avec une transition entre 308 et 318K, d'après Otsuka et Ren [75]. Les pointillés correspondent à un retour par chauffage de l'alliage NiTi.

II.2.b.Ferro-élasticité

Si le matériau est déformé alors qu'il est à une température inférieure à M_f, la superélasticité ne pourra pas apparaître : tout le matériau est sous forme de martensite et ne peut donc subir de transformation martensitique. La martensite ayant été formée thermiquement, elle sera auto-accommodée et, lors de la sollicitation, des réorientations mécaniques des variantes auront lieu, ce qui donnera d'un point de vue macroscopique une contrainte plateau de réorientation par démaclage, comme visible sur la figure 1.35.

Ce comportement est appelé ferro-élastique (par analogie aux courbes d'aimentation observées dans les matériaux ferromagétiques) et permet d'imposer des déformations rémanentes importantes au matériau.

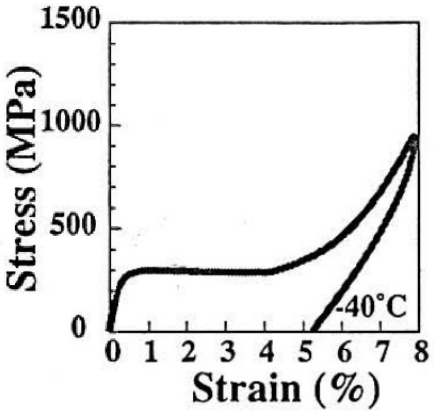


Figure 1.35 Courbe de contrainte-déformation pour un alliage NiTi ferroélastique (sous son point M_f), d'après Stoeckel et Yu [94].

II.2.c.Effet mémoire

La déformation rémanente du NiTi n'a pas la même origine que celle observée dans les métaux élastoplastiques (mouvements de dislocations). De fait, si la température est modifiée et repasse au-dessus de A_f, le matériau retrouvera sa structure austénitique initiale et avec elle sa forme initiale. Ce changement de forme est appelé effet mémoire de forme ; dans les NiTi polycristallins, il est de l'ordre de 8% en traction.

Il est aussi possible de donner un effet mémoire dans l'autre sens au matériau : partant d'une forme à haute température, il retournera dans une autre forme à basse température. Cet effet mémoire double est obtenu après un traitement thermomécanique consistant à répéter le cycle un grand nombre de fois.

II.3.Mise en forme des AMF

Du fait de leur grande déformabilité lorsqu'ils sont superélastiques et de leur microstructure martensitique lorsqu'ils sont ferro-élastiques, les NiTi sont difficiles à usiner et à mettre en forme par des moyens conventionnels (usinage ou forgeage).

II.3.a.Pièces massives

i)Par déformation

Très souvent, les AMF de types NiTi se présentent sous la forme de produits semi-finis 1D (fils) ou 2D (plaques ou films) obtenus à partir de lingots filés ou laminés à chaud puis à froid. Leurs propriétés finales sont alors induites par des traitements thermiques destinés soit à relaxer les contraintes internes induites par le formage à froid, soit à induire une précipitation ou une recristallisation. Ces traitements

thermiques permettent également de fixer une forme initiale aux AMF (par exemple pour fabriquer des ressorts). Les durées et températures des traitements thermiques vont influer sur les températures de changement de phase A_f, A_s, M_f, et A_s (*cf.* figure 1.36)

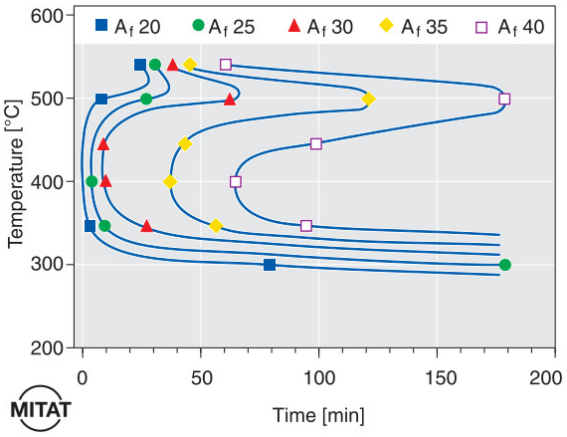


Figure 1.36 Effet du traitement thermique sur A_f avec $A_f^0 = 11°C$ dans le cas d'AMF NiTi utilisés dans le domaine biomédical, d'après Pelton et collab. [77]. Les fronts représentent le temps nécessaire à une température donnée pour atteindre une valeur donnée de A_f.

Dans le cas des NiTi utilisés dans le domaine biomédical, les procédés actuels utilisent une température de traitement thermique entre 450 et 550°C, sous une contrainte de 35 à 100 MPa, le temps étant ajusté pour arriver à la température de transformation de phase voulue.

ii) Assemblage

Deux types d'assemblage sont possibles : hétérogènes (NiTi sur un autre matériau, comme par exemple de l'acier) et homogène (NiTi sur NiTi). Les deux possibilités présentent des difficultés communes :

⇒ la présence de titane dans l'alliage le rend très sensible à la présence d'oxygène (Chuprina et Shalya [21]), et rend ainsi très difficile le soudage à haute température

⇒ le contrôle de la microstructure est très mauvais lors de la fusion de l'alliage, ce qui nécessite une série de traitements thermiques qui n'affectent pas le reste de la pièce de la même manière

Dans le cas d'un assemblage hétérogène s'ajoutent les problèmes d'accommodation entre les déformations possibles par le NiTi et celles plus faibles que peut atteindre le second matériau, ce qui va conduire à des contraintes importantes à la jonction.

II.4.Quelques exemples d'utilisation

II.4.a.Utilisation comme structure massive

À la suite de la découverte des alliages à mémoire de forme, plusieurs utilisations ont été envisagées et l'alliage a d'abord été utilisé pour sa mémoire de forme : des manchons de fluide cryogénique étaient produits aux bonnes dimensions puis soumis à une déformation à froid de telle sorte que le diamètre soit supérieur à celui des deux tubes à raccorder. Sur place, le manchon était mis en place sur les deux tubes puis chauffé au dessus de A_f pour déclencher l'effet mémoire (figure 1.37). Le manchon reprenait alors la dimension qu'il avait avant la déformation à froid par effet mémoire et les deux pièces étaient jointes efficacement (Duerig et Pelton [28]). Ce même procédé est aussi utilisé en orthopédie pour réaliser des agrafes osseuses ou autres dispositifs serrants (Elahinia et collab. [31]).

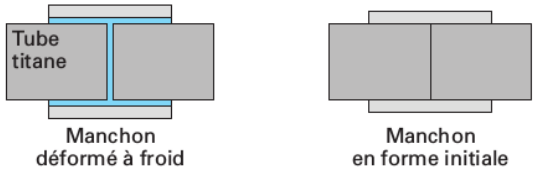


Figure 1.37 Application du NiTi : assemblage de tubes par effet mémoire, d'après Lebreton [55].

Une autre utilisation de l'effet mémoire (double dans ce cas) est la fabrication de dispositifs mécaniques de petites dimensions : en utilisant une pièce ayant une forme à haute température et une autre à basse température, il est possible de réaliser des micro-activateurs : la pièce est réalisée avec par exemple la forme d'une pince : ouverte à basse température et fermée à haute température. Il suffit alors en utilisation de chauffer la pièce (par exemple par effet Joule) pour la fermer et de la laisser refroidir pour l'ouvrir (Lebreton [55]).

Deux autres exemples d'application s'appuient sur le comportement superélastique du NiTi : du fait de sa forte déformation réversible, il est utilisé pour des interventions par cathétérisme (angioplastie avec pose de stent). Dans ce cas, le stent (un fin treillis métallique) est fabriqué à la dimension finale souhaitée puis comprimé afin de pouvoir passer par les veines jusqu'à l'emplacement où il doit être posé. Le stent reprend sa forme initiale lorsque le maintien par le cathéter est enlevé, par simple retour superélastique (Liu et collab. [62]).

Le NiTi est aussi envisagé comme une alternative aux alliages inoxydables actuellement utilisés pour les implants osseux pour s'approcher au mieux des propriétés mécaniques de l'os (figure 1.38) afin de s'assurer qu'il n'y aura pas de rejet de la prothèse (descellement par déviation de contraintes entre autres (Gibson et Ashby [38])).

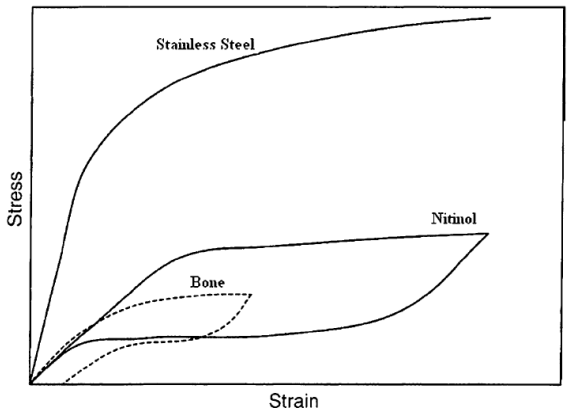


Figure 1.38 Comparaison des comportements mécaniques du NiTi et de l'acier inoxydable avec celui de l'os cortical, d'après Krishna et collab. [51].

Une dernière utilisation de ce matériau est possible dans sa forme massive afin d'absorber les vibrations, comme par exemple dans certains dispositifs parasismiques (Song et collab. [92]) dans le génie civil.

II.4.b.Pièces architecturées

Les utilisations biomédicales (en particulier les prothèses osseuses) nécessitent des milieux poreux pour deux raisons : biologique et mécanique. En effet, il faut que la prothèse osseuse puisse être colonisée par les tissus environnants pour être bien intégrée. D'un point de vue mécanique, le NiTi s'approche beaucoup des propriétés de l'os (figure 1.38), mais il est encore trop rigide et nécessite donc d'être architecturé pour remplacer au mieux l'os, notamment dans ses parties trabéculaires, où l'os est très poreux.

Cependant, la technique la plus utilisée industriellement pour créer des milieux poreux en NiTi repose sur le frittage de poudres, ce qui pose les mêmes problèmes que pour des assemblages par soudage. Pour répondre au problème d'oxydation du NiTi, Aydogmus et Bor [4] et Aydogmus et collab. [6] proposent de mettre la poudre de NiTi dans un creuset avec du magnésium pour diminuer localement la teneur en oxygène de l'atmosphère ("getter"). Cette méthode permet de réaliser le frittage de la poudre, mais les propriétés mécaniques obtenues ne sont pas satisfaisantes : le matériau ne présente pas ou peu de superélasticité, ainsi que des résidus de magnésium oxydé au sein de la structure.

D'autres tentatives utilisant par exemple le frittage par SPS (Spark Plasma Sintering, Shearwood et collab. [91]) sur des nano-poudres de NiTi, ont permis de fabriquer des milieux peu denses qui montrent un comportement superélastique, qui est perdu pour des échantillons de densité plus importante.

Greiner et collab. [39] proposent de leur côté une fabrication par frittage sous pression isostatique à chaud, qui permet d'atteindre des porosités de 20%, avec des

propriétés superélastiques. Les porosités supérieures à 11% sont plus difficiles à atteindre (très longs temps d'émulsion), puisque limitées par le procédé qui nécessite de faire apparaître des bulles d'argon sous haute pression dans le milieu. À noter aussi que les déformations observées lors des essais de compression de ces milieux ne dépassent pas les 8%.

Une dernière possibilité concernant les milieux architecturés est proposée par Krishna et collab. [51], où le milieu poreux est fabriqué par frittage laser dans une imprimante 3D. Cette méthode permet de créer des objets macroscopiques, avec des tailles de pore assez importante, et potentiellement de forme complexe. Les seules analyses thermiques réalisées montrent que le matériau présente une transformation de phase à environ 100°C, ce qui implique que le matériau ne sera pas superélastique à température ambiante.

II.5.Conclusion

Les alliages à mémoire de forme de type NiTi proposent toute une gamme de comportements selon leur histoire thermomécanique et la température à laquelle ils sont utilisés, mais cela implique que cette histoire thermomécanique puisse être maîtrisée afin de connaître au mieux les propriétés du matériau final. Ceci peut être fait relativement facilement pour des pièces massives, mais les matériaux architecturés à base d'AMF sont encore un challenge pour le moment. Pour pouvoir fabriquer des milieux poreux à base de NiTi, il faut pouvoir s'affranchir des problèmes de frittage ou même utiliser une technique n'utilisant pas le frittage.

Comme cela est déjà le cas pour d'autre techniques, pouvoir fritter le NiTi n'est pas synonyme de pouvoir utiliser les propriétés particulières du matériau massif : d'autres méthodes sont donc à développer.

III.Bilan et Objectifs de la thèse

Comme nous avons pu le voir dans la deuxième partie de ce bref état de l'art, les alliages à mémoire de forme, et plus particulièrement les alliages de type NiTi, présentent une large palette d'applications du fait de leur propriétés thermomécaniques remarquables. Combinés à leur bonne biocompatibilité, les AMF NiTi sont ainsi très utilisés dans le domaine biomédical, notamment pour se substituer aux os dont le comportement mécanique à l'état dense (os cortical) est relativement proche. Les travaux actuels cherchent à optimiser ce biomimétisme, en tentant d'élaborer des structures poreuses en NiTi mieux adaptées (i) au mimétisme mécanique des os spongieux (ou trabéculaires) et (ii) à une colonisation optimisée des interfaces NiTi-os par les cellules osseuses. Si, pour cela, il est aujourd'hui possible de générer des milieux de NiTi à porosité variable et contrôlée, pour viser des contraintes morphologiques propres à chaque patient, nous avons vu qu'il était en revanche très difficile de procurer à ces biomatériaux de bonnes propriétés mécaniques : les techniques d'élaboration,

essentiellement issues de la métallurgie des poudres, sont délicates à mettre en œuvre et s'accompagnent d'artefacts d'élaboration, comme les peaux d'oxydes fragilisantes. D'autres solutions sont actuellement à l'étude pour limiter ce genre de problèmes, comme par exemple le soudage de tubes par résistance pour fabriquer des structures alvéolées 2D (Delobelle et collab. [26]) : ces solutions exploratoires sont encore à creuser pour être opérationnelles, elles ne permettent pas pour le moment de créer des milieux poreux à mésostructures 3D.

Nous avons également vu que les milieux fibreux pouvaient être agencés de sorte à produire des structures poreuses 3D, avec une diversité importante de procédés d'élaboration, de nombreuses mésostructures disponibles et "réglables", et avec des comportements mécaniques très variés fonction des architectures et des liens entre fibres. Par exemple, les laines sont très faciles à mettre en œuvre, mais présentent en général de faibles propriétés mécaniques avec pas ou peu de cohésion. A l'opposé, les matériaux tissés 3D qui connaissent un essor particulier ont de très bonnes propriétés mécaniques mais reposent sur des procédés complexes et coûteux (Lomov et collab. [64]). Dans un registre intermédiaire, nous avons vu que les architectures de monofilaments auto-enchevêtrés permettaient également de réaliser des structures poreuses 3D, avec un très bon compromis entre complexité/coût d'élaboration et propriétés mécaniques. En particulier, les structures à base de ressorts permettent de s'affranchir des problèmes d'inhomogénéité rencontrés dans le cas de fils initialement droits. Cependant, à l'heure actuelle, si leurs mésostructures peuvent être contrôlées, leur comportement mécanique est complexe et encore mal compris. En outre, elles reposent sur l'utilisation de fils métalliques élastoplastiques à relativement faible limite élastique, ce qui conduit à des propriétés macroscopiques elles-aussi rapidement élastoplastiques : ceci peut être préjudiciable dans le cas des biomatériaux pour substituts osseux.

Jusque là, aucune tentative n'a été envisagée pour remplacer ces filaments par des filaments en NiTi. Vis-à-vis des milieux poreux en NiTi actuels, cette architecture présenterait pourtant l'avantage de ne pas nécessiter de frittage, point faible clé des structures poreuses NiTi actuelles. Par rapport aux structures monofilamentaires auto-enchevêtrées actuelles, elle pourrait également avoir des propriétés superélastiques et de mémoire de forme, directement héritées du fil qui les constituent. Ainsi, les possibilités offertes par de telles architectures sont multiples, mais soulèvent plusieurs questions :

⇒ comment peuvent-elles être produites ?
⇒ quelles sont leurs propriétés mésostructurales et mécaniques ?
⇒ dans quelle mesure ces propriétés sont-elles liées aux propriétés des AMF ?
⇒ quels sont les mécanismes mésoscopiques qui sous-tendent les réponses de ces milieux monofilamentaires aux sollicitations mécaniques ?

Dans ce travail de thèse, en cherchant à élaborer des milieux monofilamentaires auto-enchevêtrés à base de fils en NiTi, nous allons essayer de répondre à ces questions :

⇒ dans le chapitre deux, nous présentons une méthode pour élaborer ces struc-

tures, en s'inspirant et en modifiant les procédures d'élaboration de la littérature. Les mésostructures et les propriétés thermomécaniques des architectures fibreuses produites sont caractérisées (microtomographie RX et essais de compression simples) et discutées. Les pelotes produites ont des structures homogènes, il est possible de contrôler leur porosité, elles présentes des propriétés superélastiques, de mémoire de forme et d'amortissement nouvelles et potentiellement très intéressantes

⇒ dans le chapitre trois, nous chercherons à comprendre plus finement les mécanismes de déformation de ces milieux fibreux. Pour scinder effets induits par la nature du fil et effets de mésostructures, différentes pelotes sont produites avec des fils en NiTi (superélastique), nylon (élastique) et cuivre (élastoplastique). Des mesures de champs cinématiques combinées à des essais de traction et de compression permettent de montrer que ces milieux auto-enchevêtrés présentent un comportement mécanique tout à fait inhabituel, avec une très forte dilatance en compression, mais aussi un comportement auxétique en traction. Dans le cas des fils élastiques et superélastiques, ces phénomènes sont en outre réversibles.

⇒ L'analyse est poussée plus loin dans le dernier chapitre, dédié à l'étude fine des mésomécanismes de déformation dans les pelotes (super)élastiques. Pour cela, un essai de compression simple est réalisé dans un microtomographe à rayons X. Le dépouillement de cet essai donne accès à de nombreux descripteurs de mésostructures (porosité, orientation et courbure des fibres, nombre, orientation et longueur de contacts), qui permettent à leur tour de mieux comprendre le comportement mécanique observé à l'échelle supérieure. En parallèle, nous effectuons des simulations discrètes de la déformation des pelotes, à l'aide d'un code dédié (Rodney et collab. [86]). Après avoir généré des échantillons réalistes, ces derniers sont comprimés. Les résultats des simulations sont en bon accord avec les observations faites par l'essai *in-situ*. Elles permettent alors de creuser l'analyse des mécanismes de déformation.

2

Fabrication et caractérisation d'un milieu auto-enchevêtré à base de NiTi

Ce chapitre est un article proposé pour publication dans *Acta Materialia*.

NiTi porous materials with unprecedented superelasticity and shape memory were manufactured by self-entangling, compacting and heat treating NiTi wires. The versatile processing route used here allows to produce entanglements of either superelastic or ferroelastic wires with tunable mesostructures. Three dimensional (3D) X-ray microtomography shows that the entanglement mesostructure is homogeneous and isotropic. The thermomechanical compressive behavior of the entanglements was studied using optical measurements of the local strain field. At all relative densities investigated here ($\sim 25-40\%$), entanglements with superelastic wires exhibit remarkable macroscale superelasticity, even after compressions up to 25%, large damping capacity, discrete memory effect and weak strain-rate and temperature dependencies. Entanglements with ferroelastic wires resemble standard elastoplastic fibrous systems with pronounced residual strain after unloading. However, a full recovery is obtained by heating the samples, demonstrating a large shape memory effect at least up to 16% strain.

Sommaire

I Introduction 53
II Experimental procedure 54
II.1 Material and sample processing 54
II.2 Mesostructure characterization 55
II.3 Thermomechanical characterization 58
III Wire properties after processing 59
IV Mesostructure of the entanglements 61
V Thermomechanical behavior 62
V.1 Typical results for samples in *state 1* 62

V.2 Influence of the strain rate and testing temperature . . . 64
V.3 Influence of the fiber content and the maximum compression strain . . . 65
V.4 Hysteresis and Discrete Memory . . . 67
V.5 Hysteresis and Energy Dissipation . . . 69
V.6 Samples in state 2 : ferroelasticity and shape memory effect 70
VI Concluding Remarks . . . 71

I. Introduction

Due to their biocompatibility and potentially interesting mechanical properties, porous NiTi materials are promising architected media, in particular for biomedical applications such as bone implants [10, 37]. Up to now, most of these materials were processed by powder metallurgy technologies, *e.g.* self-propagating high-temperature synthesis [15, 49], spark plasma sintering [111], hot isostatic pressing [52] and conventional sintering [14, 4, 5]. Many difficulties arise with these processing routes, including the growth of a brittle oxide skin and a difficult control of (i) the porous mesostructure, (ii) the microstructure and (iii) the thermomechanical properties of the NiTi solid phase. Intense research was devoted to overcome these difficulties, largely improving the resulting mesostructures and biocompatibility [10, 37]. However, the macroscale mechanical properties of NiTi porous media, such as their superelasticity and shape memory, are still lower than in bulk NiTi alloys. Furthermore, porous alloys suffer from large residual strains induced by stress concentrations that arise at grain boundaries and necks and lead to local plastic deformations and ruptures [47].

In parallel, there is a growing research activity on the development of new types of metal porous media made of self-entangled monofilaments [62, 98, 61, 24, 43, 108, 48]. These fibrous materials are often called "entangled metallic wire materials" or "metal rubber" because their mechanical behavior reminds that of elastomers. Compared to NiTi foams, manufacturing is simpler, consisting in cold/hot working treatments to create a significant amount of self-entanglements of the wire. Up to now, various metal wires have been used : steel [62, 58, 24], Al [98], Ti [61, 43, 48] and Ni [108]. To strengthen their mechanical response, sintering or glueing operations can be used [62, 58, 61, 43, 48]. In all cases however, the mechanical behavior still exhibits limited reversible strain, typically $0.01 - 0.1$ in compression. This is mainly due to the low yield stress of the elastoplastic wires, which deform plastically during the macroscopic deformation of the entanglements. To limit this effect, Courtois [24] entangled high yield stress perlitic steel wires, but the resulting architecture was highly heterogeneous due to the important spring back effect induced by the stiff wire and the entanglements had to be confined inside a solid container, thus severely limiting the use of perlitic steel wires.

In this context, the main objective of the present work is to process a novel homogeneous porous NiTi material that exhibits important superelastic and shape memory effects, *i.e.* with a strain reversibility largely above those observed with other NiTi porous media, as well as other entangled monofilaments. To circumvent the difficulties mentioned above, we revisited and adapted the manufacturing route of single-wire materials to the case of a commercial biomedical grade NiTi alloy. Moreover, tuning the processing parameters allowed us to tailor the mesostructure, superelasticity behavior and shape memory properties of these new NiTi porous materials. In the following, the methods used to prepare and characterize these materials are presen-

ted (Section II), together with both the properties of the shaped wires (Section III) and their mesostructures (Section IV). The macroscale thermomechanical properties of the entanglements are then investigated and discussed (Section V).

II.Experimental procedure

II.1.Material and sample processing

The route used to manufacture NiTi porous materials is inspired from the work of Tan et collab. [98] for ductile and elastoplastic Al alloy wires. As illustrated in Fig. 2.1, there are three steps to process homogeneous specimens : (i) shaping a spring from a straight wire using plastic deformation, (ii) entangling the spring into a spring ball, and (iii) setting the final shape and consolidating the entanglement by close die compaction. A standard biomedical-grade Ni-50.8at.%Ti supplied by Forth Wayne Metals in cold worked state with a diameter $d_f = 500$ μm was chosen for its capability to display a superelastic behavior at room temperature and a shape memory effect after suitable short and low-temperature heat treatments. The spring shape in step (i) was achieved by rolling the wire around a 3 mm diameter threaded cylindrical bar, with a pitch close to the wire diameter. A cylindrical steel close die mounted on tension-compression testing machine (MTS DY34, maximum force 100kN) equipped with a furnace was used for step (iii). The final samples have a cylindrical shape with a height $H_0 = 27$ mm and a diameter $D_0 = 20$ mm. Samples of various initial relative density, or fiber content, $\bar{\phi}$, ranging from 0.27 to 0.36, were produced by starting with straight wire of lengths between 11.66 m and 15.55 m.

In its initial cold worked state, the NiTi wire is elasto-plastic with a high yield stress ($\approx$ 1800 MPa), pronounced strain hardening and a rather small ultimate tensile strain ($\approx$ 0.04). These features are not compatible with the low yield stress and high ductility necessary to process homogeneous self-entangled materials, as already pointed out in the Introduction [96, 95, 24]. To overcome these difficulties, the deformed wires were subjected to short optimised heat treatments [77, 32] at 623 K for 2 min (followed by water quenching) after both steps (i) and (iii).

The temperature and duration of the heat treatments were also chosen to ensure that the wire was superelastic at room temperature [77, 32], a state called *state 1* hereafter. Therefrom, the entanglement thermomechanical properties could be tailored using additional heat treatments. For example, the superelastic domain could be shifted to higher temperatures by heating the samples at 723 K during 1 h. The resulting new state of the entangled wire, which is now ferroelastic at room temperature, will be called *state 2*.

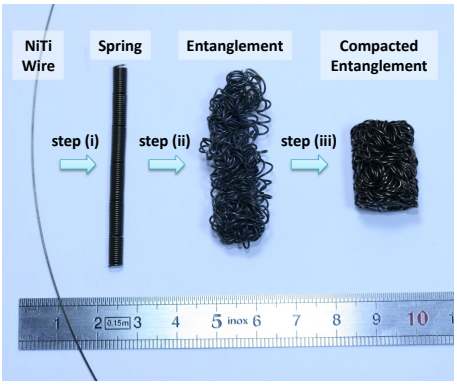


Figure 2.1 Illustration of the various shape setting operations followed to produce a homogeneous NiTi entangled single-wire material.

II.2. Mesostructure characterization

Information about the entanglement mesostructures was obtained by scanning two typical samples, *i.e.* with $\bar{\phi}$= 0.3 and 0.36, inside an X-ray laboratory microtomograph (RX solution, 3SR Lab, Grenoble, France). The scans were obtained with 1200 2D radiographs onto a 1914 × 1580 pixels flat panel (leading to a voxel size = 23 × 23 × 23 μm^3), a scanning intensity of 200 μA, a tension of 150 kV, and an exposure time per radiograph of 0.25 s (to restrain the noise, an average of six radiographs per 2D image was used). To reduce beam hardening effects, a 1 mm Cu filter was positioned between the X-ray source and the sample. After reconstruction followed by filtering and thresholding operations, 3D binarized images of the samples were obtained. An example is shown in Fig. 2.2(a). The images were used to analyse :

⇒ the local fiber content profiles along the height and radius of the samples (Fig. 2.2(c-d)).

⇒ the pore size distribution, by using morphological operations from an hexagonal structural element with an eight voxel size (Fig. 2.2(f)) [65, 19].

⇒ the anisotropy, connectivity and mean curvature of the wire, by following the method proposed by Latil et collab. [54] and Orgéas et collab. [69]. As illustrated in Fig. 2.2(b), the centerline of the wire was first detected by (i) estimating the 3D Euclidian distance map of the fibrous phase, (ii) thresholding the resulting grey scale image at an intermediate grey value to eliminate contact zones from the image, (iii) skeletonizing the thinned wire, (iv) smoothing the resulting skeleton to obtain its centreline. The skeleton was discretized in elementary segments. The segment length was chosen equal to $2d_f$, twice the fiber diameter. Each segment i has a curvilinear abscissa and unit tangent vector, respectively noted s_i and $\mathbf{a}_i$. For the two scanned samples, *i.e.* with $\bar{\phi}$= 0.3 and 0.36, the number of segments M was 12960 and 15552, respectively.

The mean orientation of the centerline was determined by computing the second order fiber orientation tensor $\mathbf{A}$ [1] (see Fig.2.2(e)) :

$$\mathbf{A} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^{M} \mathbf{a}_i \otimes \mathbf{a}_i. \tag{2.1}$$

The variation of tangent vector $\mathbf{a}_i$ along the curvilinear abscissa s_i of the wire was used to compute the local mean curvature κ_i (see Fig. 2.2(g)) :

$$\kappa_i = \left|\left|\frac{\mathrm{d}\mathbf{a}}{\mathrm{d}s}\right|\right|_{s_i}. \tag{2.2}$$

Self-contacts were defined as pairs of elementary segments with a distance less that the fiber diameter. Each contact j was ascribed an orientation unit vector $\mathbf{b}_j$ normal to its contact plane. The mean contact orientation was then estimated from the second order contact orientation tensor $\mathbf{B}$ (see Fig. 2.2(e)) :

$$\mathbf{B} = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^{n} \mathbf{b}_j \otimes \mathbf{b}_j, \tag{2.3}$$

where n is the total number of elementary contacts. We should note that a single contact may be composed of several elementary contacts that link neighboring segments. We thus distinguish between elementary contacts as used in the above equation, whose number depends on the choice of discretization length, and full contacts that were obtained after agglomeration of elementary contacts between neighboring segments. In the following, we will note n, the number of full contacts per unit fiber length. Their length l_c was also computed and analyzed (see Fig. 2.2(h)).

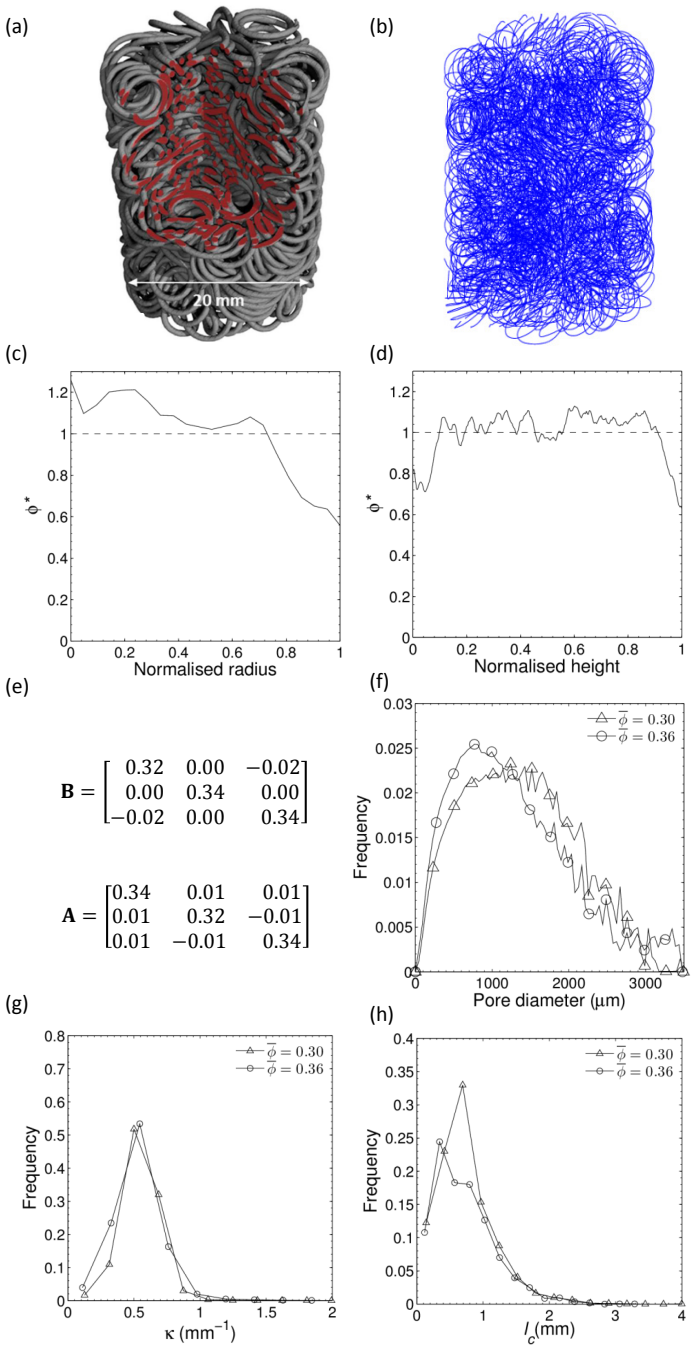


Figure 2.2 3D view (a), centerline (b) and second order fiber and contact orientation tensors **A** and **B** (e) of a NiTi entanglement with a mean fiber content $\bar{\phi} = 0.36$, together with fiber content profiles $\phi^* = \phi/\bar{\phi}$ along its radius (c) and height (d). The pore size (f), mean curvatures (g) and contact lengths (h) distributions are also shown for both scanned samples.

II.3. Thermomechanical characterization

The local stress-free forward and reverse martensitic transformations of the processed entanglements were analyzed by cutting small wire pieces inside samples and subjecting them to DSC measurements. Straight wires that had undergone the same thermal history as the entanglements were also tested. The tensile mechanical behavior was assessed at various temperatures ranging from 293 K to 353 K, subjecting the wires to load-unload cycles up to a maximum tensile strain of ≈ 0.08 at a strain rate of 10^{-3}s^{-1} (testing machine Gabo Eplexor 500 N equipped with a furnace). Furthermore, the processed entanglements were subjected to compression cycles at various temperatures and strain rates ranging respectively from 293 K to 353 K and from 4 10^{-4} s^{-1} to 3.7 10^{-2} s^{-1}. The samples were placed inside a compression rheometer with parallel plates equipped with an inner heating system [41] and mounted on a mechanical machine (MTS DY26, maximum force 100 kN). During the tests, the recorded compression force, F, and the current sample height, H, were used to estimate the nominal compression stress $\sigma = 4F/\pi D_0^2$ and global axial compression Hencky strain $\varepsilon_g = \ln(H/H_0)$. In the following, the reference testing temperature and strain rate are set to 293 K and 4 10^{-4} s^{-1}.

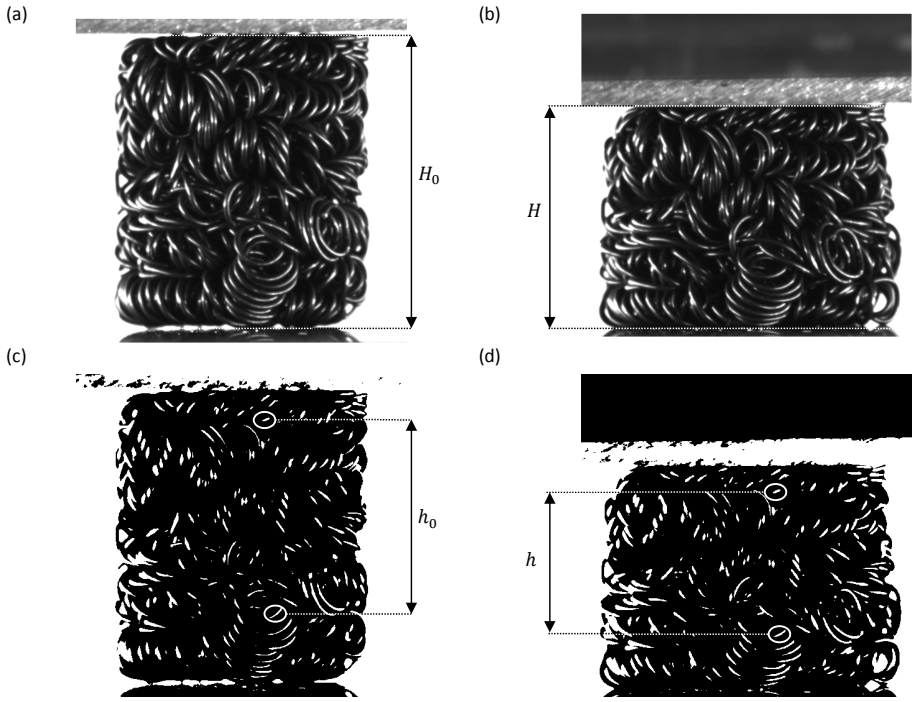


Figure 2.3 Illustration of the particle tracking method used to assess the local compressive strain : grey scale (a,b) and segmented (c,d) pictures of the sample before (a,c) and during (b,d) compression.

To avoid errors on the strain measurements induced by edge effects such as friction between the sample and the plates or inhomogeneities on the outside of the samples, a local strain measurement was developed using images of the sample taken during the tests with a CCD camera (Jai Pulnix RM-4200GE, spatial resolution 2048×2048). As illustrated in Fig. 2.3, a segmentation of the grey scale images (Fig. 2.3(a,b)) together with a particle tracking procedure (developed with ImageJ and Matlab) were used to obtain the coordinates of the centers of mass of the enlightened parts of the fiber (Fig. 2.3(c,d)). By following the image sequences, we defined a gauge zone in the center of the samples, within which the strain could be assessed. The enlightened parts of the fibers that were as close as possible from the borders of this zone (in the initial configuration) were automatically detected and followed during the compression cycles to determine the initial (h_0) and current (h) heights of the gauge region, from which we determined the local Hencky axial strain $\varepsilon_a = \ln(h/h_0)$.

III.Wire properties after processing

As shown in Fig. 2.4(a), within the investigated temperature range, DSC measurements for the entangled wires in *state 1* exhibit a single transformation peak upon cooling and heating, presumably associated with forward A-R (Austenite to R-Phase) and reverse R-A martensitic transformations. These peaks are very flat, with latent heats $\Delta H^{A-R} \approx \Delta H^{R-A} \approx 2$ J g^{-1}. Conversely, in *state 2*, the wires exhibit two stage A-R-M (Austenite to R-phase to Martensite) and M-R-A transformations with pronounced transformation peaks and latent heats ($\Delta H^{A-R-M} \approx \Delta H^{M-R-A} \approx$ 16 J g^{-1}). Upon heating, the transformation end temperature, A_f, is close to 328 K.

As expected from the DSC measurements, the room temperature wire tensile behavior in *state 1* is superelastic (see Fig. 2.4(b)) : upon loading, after an initial apparent elastic regime, the stress-strain curve shows a high R-M transformation stress, $\sigma^{tr} \approx$ 550 MPa, and a transformation plateau within a strain range $\Delta\varepsilon^{tr} \approx 0.05$. Unloading leads to the reversed process, with a pronounced stress hysteresis and a small residual strain. Conversely, wires in *state 2* are ferroelastic, with a large residual strain upon unloading due to the unrecoverable strain produced during loading by the stress-induced A-R-M and A-M forward transformations. Note however that the transformation strain may be recovered by stress-free heating above A_f. Also, as seen in Fig. 2.4(c), the transformation stresses recorded in both states at the onset of the stress-induced forward transformation, σ^{tr}, follows a Clausius-Clapeyron like relation, with a slope close to 5.6 MPa.K^{-1}, in agreement with values commonly reported for similar heat treated NiTi alloys [93, 77, 32].

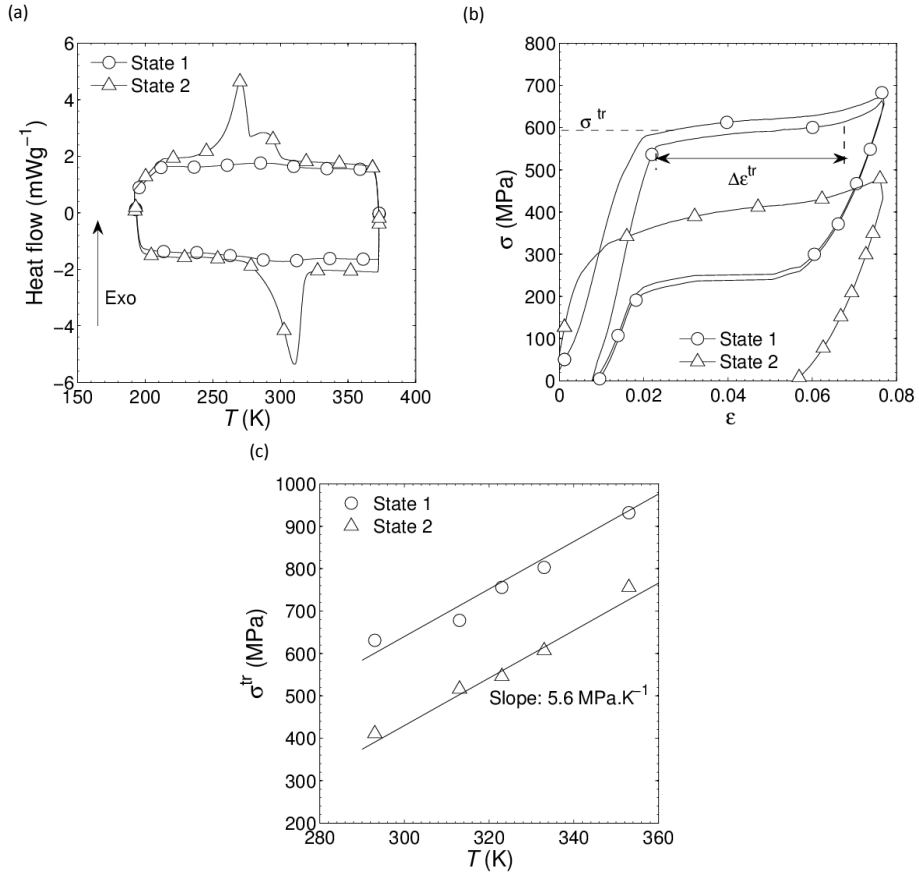


Figure 2.4 DSC curves of small portions of the entanglements in *states 1* and *2* (a), tensile stress-strain curves of two straight wires subjected to same thermal history as the entanglements (b), and evolution of the forward stress-induced transformation stresses σ^{tr} with temperature (c).

IV. Mesostructure of the entanglements

Fig. 2.2 summarizes the information gathered on the entanglement mesostructure. We focus here on 2 representative samples with mean relative densities $\bar{\phi}$ =0.3 and 0.36. Fig. 2.2(a) shows a cut through a tomographic reconstruction, where we see a complex architecture that may be described at two levels : at short range, the structure is made of a quasi-ordered spring, but at longer range, the spring is entangled with itself in a disordered fashion. As illustrated from the two profiles of the normalized relative density in Fig. 2.2(b-c) ($\phi^* = \phi/\bar{\phi}$, ϕ and $\bar{\phi}$ being the local and mean relative densities), the fiber content inside the samples is close to homogeneous. This is in contrast with systems obtained after entangling a straight wire where the density strongly increases on the outside of the samples [24]. The reason is that the fiber decreases its curvature by moving to the outside. Here, this relaxation is not possible because the high tortuosity of the spring leads to the formation of numerous contacts in the spring ball (step (ii) in Fig. 2.1) that efficiently lock the fiber.

The pore size distribution shown in Fig. 2.2(f) exhibits a broad peak at ≈ 1300 μm for $\bar{\phi} = 0.3$. As expected, increasing the fiber content to $\bar{\phi} = 0.36$ creates smaller pores, with a sharper peak shifted down to ≈ 750 μm. The peak pore size may thus be tuned by simply changing the length of the initial wire (and thus the fiber content $\bar{\phi}$) without changing any of the other processing parameters. This will also affect the mechanics of the entanglements (see next Section). It is also interesting to notice that the pore size distribution could also be shifted down at fixed fiber content (and presumably fixed mechanical properties) simply by reducing both the wire diameter and the diameter of the threaded bar used to coil the springs. Thus, combined with the open-pore nature of the entanglement, the resulting mesostructure would fit values commonly admitted for bone implants, *i.e.* mean pore size between 100 and 600 μm [10].

Distributions of the mean curvature are reported in Fig. 2.2(g). They display narrow peaks near 0.55 mm^{-1} and 0.52 mm^{-1} for $\bar{\phi}$ =0.27 and 0.36, respectively. These values are close to the principal curvature $\bar{\kappa}_0 \approx 0.57$ mm^{-1} of the non-entangled spring. Thus, the moderate stretching and folding of the spring induced during steps (ii) and (iii) of the manufacturing process do not induce noticeable changes of this mesostructure parameter.

The diagonal values of the orientation tensors $\mathbf{A}$ and $\mathbf{B}$ are nearly identical and close to 1/3 (see the data given in Fig. 2.2(e) for the sample with $\bar{\phi}$ =0.36), confirming that on average, the entanglement is isotropic, without preferred orientation for the wire centerline or its self-contacts.

The estimated number of full contacts per unit fiber length, N, is close to 0.40 mm^{-1} and 0.50 mm^{-1} for $\bar{\phi}$ =0.27 and 0.36, respectively. In other words, the two scanned samples exhibit respectively 2608 and 3874 full contacts. This emphasizes both the very high connectivity of the entanglements and its increase with fiber content $\bar{\phi}$.

Besides, the measured ratio $q = n(\bar{\phi} = 0.3)/n(\bar{\phi} = 0.36)$ is close to 0.83. It is worth mentioning that this ratio is consistent with the ratio q predicted by the excluded volume theory for isotropic networks of straight fibers with circular cross section [27, 85, 99, 69] :

$$q(\phi_1, \phi_2) = \phi_1/\phi_2, \tag{2.4}$$

which yields $q = 0.81$ for ϕ_1 =0.3 and ϕ_2 =0.36, again emphasizing the effect of the fiber content on the entanglement connectivity.

Lastly, as shown in Fig. 2.2(h), the distributions of contact lengths are wide with a predominant contact population marked by a distinct peak, but also a distribution of short contacts, down to zero length. As illustrated by the 3D micrographs displayed around the graph, the first type of contacts mainly corresponds to zones where the spring was not stretched enough during the processing of the entanglements (step (ii) in Fig.2.1), whereas the other types of contacts correspond to smaller contacts often observed in other fibrous materials with random fiber orientation. It is worth noting that the predominant contact length respectively peaked close to 400 μm and 700 μm for $\bar{\phi}$ =0.3 and 0.36 : increasing the fiber content yields to an increase of both the number of full contacts (see previous point) and their length.

V. Thermomechanical behavior

V.1. Typical results for samples in *state 1*

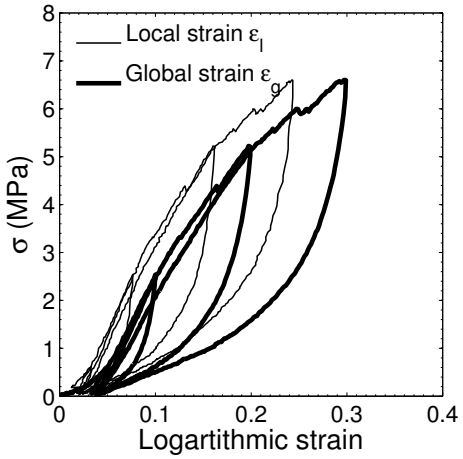


Figure 2.5 Typical stress-strain curves obtained during compression load-unload cycles for a sample in *state 1* ($\bar{\phi} = 0.36$, reference testing temperature and strain rate).

Fig. 2.5 shows typical stress-strain curves obtained during compression load-unload cycles at the reference testing temperature and strain rate. Here the stress is shown

as a function of both the global and local strains. At the sample scale, Fig. 2.3 shows that the deformation proceeds without pronounced friction effects at the compression plates since the initial cylindrical shape is preserved even at finite deformation. However, we have seen in Fig. 2.2 that the relative density is not fully homogeneous, in particular near the top and bottom of the samples. We may thus expect more pronounced deformations in this regions. Indeed, we find in Fig. 2.5 that the global strain measured at the level of the structure is noticeably larger than the local strain, which is measured in a gauge region near the center of the sample. We ascribe this difference to larger deformations near the top and bottom of the samples. For this reason, we will consider only the local strain in the following.

The stress-strain loading curve exhibits a marked strain hardening, even at elevated compression strains, which is interesting for structural applications. This was observed independently of the state, fiber content, temperature and strain rate. This phenomenological feature is different from foams [38], which exhibit stress plateaux. The reason is the continuous formation of new contacts during compression, which stiffen the structure. The stress-strain curves in Fig. 2.5 start with a low slope, at least during the first cycle, which is typical of non-bonded fibrous systems where the fibers rearrange to adapt to the applied strain. Then, the strain-stiffening rate increases rapidly up to about $\varepsilon = 0.1$. This behavior is related to a consolidation of the structure [100, 79, 67, 78], the principal underlying mechanisms being a rearrangement of the fibrous mesostructure, an increase of the number and/or surface of fiber-fiber contacts, which in turn restrains the motion, rearrangement and deformation of fiber segments [107, 100]. For strains above about 0.1, the stress increases less rapidly, which is unusual for compressed fibrous materials made of elastic fibers. In the case of elastoplastic (or brittle) fibers, this phenomenon is related to the plasticity (resp. rupture) of fibers during loading [100, 98, 24]. For NiTi wires, it should rather be ascribed to the forward martensitic transformation induced in the vicinity of contact zones where the wire is significantly bent.

Fig. 2.5 also shows upon unloading a nearly full recovery of the imposed strain, even when the maximum local strain reaches 0.3 (corresponding to a global strain ≈ 0.4). The strain recovery is accompanied with a noticeable hysteresis. To the best of our knowledge, such macroscale superelastic behavior has never been observed at elevated strains in porous/fibrous metals, even with similar mesostructures. Indeed, Tan et collab. [98] and Zhang et collab. [108] observed a nearly full compression strain recovery for entangled elastoplastic Al alloy monofilaments but with a maximum applied global strain of 0.13 only to avoid wire plasticity. The present macroscale superelastic behavior is induced by the elastic energy stored in the wire upon loading and released upon unloading. It is also probably related to stress-induced reversible martensitic transformations taking place during the unloading phase. Both phenomena offer sufficient driving force to the wire to reverse the deformation mechanisms that occurred upon loading, despite significant mesostructure rearrangements and friction forces at contacts.

V.2. Influence of the strain rate and testing temperature

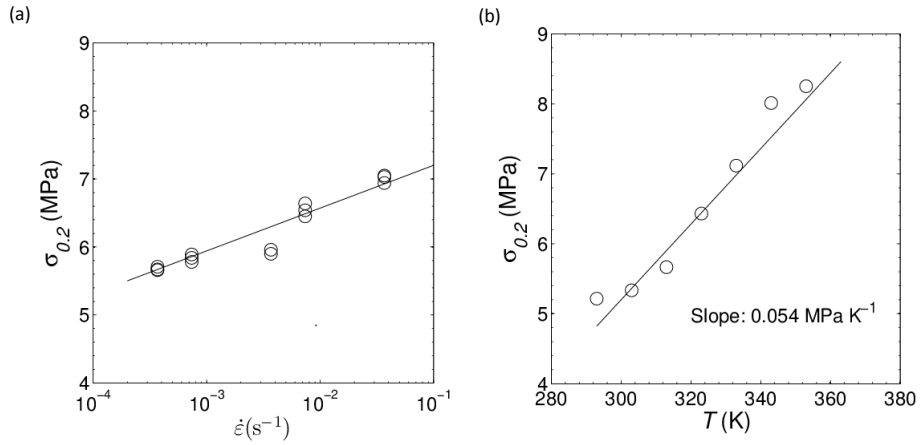


Figure 2.6 Evolution of the compression stress $\sigma_{0.2}$ with strain rate $\dot{\varepsilon}$ ($\bar{\phi}$=0.3 and T=303K) (a) and testing temperature T ($\dot{\varepsilon}$=4 10^{-4} s^{-1}) (b).

Fig. 2.6 shows the evolution of $\sigma_{0.2}$, the stress at ε =0.2, as a function of the strain rate (Fig. 2.6(a)) and testing temperature (Fig. 2.6(b)). The strain rate has a weak influence, with an increase of $\sigma_{0.2}$ by less than 20% when the strain rate is increased by 3 orders of magnitude. This weak increase may be related to the occurrence of thermomechanical couplings during stress-induced transformation in the wire [90, 32, 110].

Fig. 2.6 shows the evolution of $\sigma_{0.2}$, the stress at ε =0.2, as a function of the strain rate (Fig. 2.6(a)) and testing temperature (Fig. 2.6(b)). The strain rate has a weak influence, with an increase of $\sigma_{0.2}$ by less than 20% when the strain rate is increased by 3 orders of magnitude. This weak increase may be related to the occurrence of thermomechanical couplings during stress-induced transformation in the wire [90, 32, 110].

Fig. 2.6(b) shows the evolution of $\sigma_{0.2}$ for a sample compressed at $\dot{\varepsilon}$ = 4 10^{-4} s^{-1} at temperatures from 293 to 353 K. Obviously, the effect of the temperature is also limited, with a slope of about 0.05 MPa.K^{-1}, more than two orders of magnitude smaller that for a single wire (see Fig. 2.4). In accordance with results emphasized in Fig. 2.6(a), this may be related to the small volume fraction of wire that transforms during compression.

Assuming that the von Mises stress σ_{eq} can model transformation stress surfaces (this approximation does not account for the tension-compression asymmetry observed in NiTi alloys nor for its possible anisotropy [70, 71, 63, 35]), a first order estimate

of the transformed volume fraction, α, can be obtained by writing the average von Mises stress in the entanglement as :

$$\bar{\sigma}_{eq} = \frac{1}{V}\int_{\Omega_f^{el}} \sigma_{eq}^{el} \mathrm{d}V + \frac{1}{V}\int_{\Omega_f^{tr}} \sigma_{eq}^{tr} \mathrm{d}V \tag{2.5}$$

where V, Ω_f^{el}, Ω_f^{tr} are respectively the volume of the entanglement, the subvolume within which the parent and transformed phases are fully elastic, the subvolume being transformed. Assuming that the forward stress-induced transformation proceeds near the von Mises transformation stress σ_{eq}^{tr} with weak strain hardening (see Fig. 2.4), and under practical isothermal conditions (see above), the last term of Eq. 2.5 can be estimated as :

$$\frac{1}{V}\int_{\Omega_f^{tr}} \sigma_{eq}^{tr} \mathrm{d}V \approx \bar{\phi}\alpha\sigma_{eq}^{tr} \tag{2.6}$$

Assuming further that both α and the elasticity of the phases are weakly temperature-dependent, we obtain :

$$\frac{\mathrm{d}\bar{\sigma}_{eq}}{\mathrm{d}T} \approx \phi\alpha\frac{\mathrm{d}\sigma_{eq}^{tr}}{\mathrm{d}T} \tag{2.7}$$

From the values of 5.6 and 0.05 MPa.K^{-1} obtained for the single wire and the entanglement, we conclude that only a volume fraction $\alpha \approx 0.03$ of the entangled wire is transformed at $\sigma_{0.2}$ when $\bar{\phi} = 0.27$. This small value is a first order estimate that should be refined without the above simplifying assumptions.

V.3. Influence of the fiber content and the maximum compression strain

Fig. 2.7 shows the influence of the initial fiber content and of the maximum compression strain imposed in a given load-unload cycle, on the mechanical behavior of the entanglements. As illustrated in Fig. 2.7(a), the higher the fiber content, the higher the stress level upon loading, the larger the stress hysteresis and the larger the tangent moduli of stress-strain curves. These trends are often observed in non-bonded fibrous materials [100, 79, 67, 24]. The evolution of stress levels with fiber content is more precisely emphasized in Fig 2.7(b). For the present range of fiber contents, the increase of $\sigma_{0.2}$ is limited : from $\bar{\phi} = 0.27$ to 0.36, $\sigma_{0.2}$ raises only from 3.6 to 6 MPa. This trend is directly related to the increase of the number and length of self-contacts, as emphasized in the last Section (Fig. 2.2) : the larger the number and length of self-contacts, the more difficult the rearrangements and the higher the macroscale stress [107, 100, 67, 54, 78].

The maximum hysteresis stress σ_{hys}^{max} of a given load-unload cycle was estimated by measuring the maximum stress gap between loading and unloading, as illustrated in Fig. 2.7(c). As shown in Fig. 2.7(d), σ_{hys}^{max} is approximately twice larger when

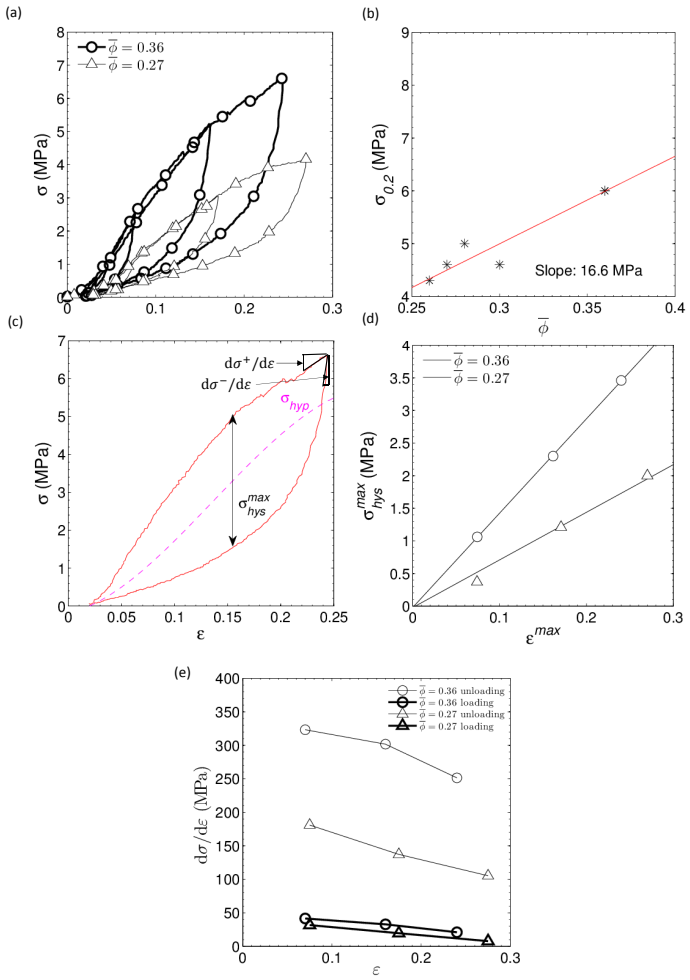


Figure 2.7 Influence of the fiber content $\bar{\phi}$ and maximum compression strain ε^{max} on stress-stress curves (a), stress $\sigma_{0.2}$ (b), maximum stress hysteresis σ^{max}_{hys} (c-d) and tangent moduli $d\sigma^+/d\varepsilon$ and $d\sigma^-/d\varepsilon$ (e).

$\bar{\phi}$ =0.36 than when $\bar{\phi}$ =0.27. Besides, a nearly linear increase of σ^{max}_{hys} with ε^{max} is also noticed. These two trends can be explained by three underlying phenomena. First, the hysteresis associated with forward and reverse stress-induced martensitic transformations increases with the maximum strain applied during a cycle [23, 72, 73]. However, this phenomenon should be of second order given the small volume fractions of transformed wire estimated above. The second possible mechanism is the rearrangement of the fibrous mesostructure : although the entanglements exhibit a superelastic behavior without marked residual strain at the macroscopic level, the rearrangements at the wire level follow different paths during loading and unloading (see next Subsection). Lastly, there is the friction induced by forces arising at self-

contacts, which is closely linked with the previous phenomenon.

Tangent moduli just before, $d\sigma^+/d\varepsilon$, and just after, $d\sigma^-/d\varepsilon$, the return point of a given load-unload cycle (see Fig. 2.5(b)) were estimated ($d\sigma^-/d\varepsilon$ estimates the Young modulus E of the entanglements, as often proposed for foams or fibrous materials). Their evolution with ε^{max} are reported in Fig. 2.5(e). As expected, $d\sigma^+/d\varepsilon$ is much lower than $d\sigma^-/d\varepsilon$, showing that, as expected, non-elastic mechanisms, such as wire rearrangements or friction as mentioned above, are involved during loading. Moreover, the measured moduli increase with ε^{max}, which could be correlated to a possible increase of the actual fiber content during loading and/or the increase of the number/surface of fiber contacts (induced by the possible increase of the actual fiber content or by the rearrangement of the entanglements). Furthermore, a noticeable increase of E with the initial fiber content $\bar{\phi}$ is noticed : this is directly connected to the increase of the number of fiber contacts with $\bar{\phi}$ (see section IV, [100]).

Lastly, the Young moduli estimated from $d\sigma^-/d\varepsilon$ in Fig 2.7(b) strongly depend on the fiber content and less on the applied strain. We find Young moduli broadly between 100 and 350 MPa. These are lower than often reported for metal foams with similar relative densities (in general above 1 GPa [38]). Nonetheless, the Young moduli found here are within the range of 10-3000 MPa estimated for trabecular bones [50, 38, 37], and very close to values given for porous NiTi materials used for biomedical implants [80]. The present architecture may therefore be a potential candidate for biomedical applications, with the very interesting advantage of being superelastic and highly adaptable to applied loads.

V.4.Hysteresis and Discrete Memory

The hysteretic behavior of the entanglements is further explored in Fig. 2.8. This stress-strain diagram was obtained using a specifically designed cycling. A first major load-unload loop noted 0-5-0 in Fig. 2.8 was performed from $\varepsilon = 0$ to $\varepsilon^{max} = 0.3$ then back to $\varepsilon = 0$. Then, a partial loop cycling was started at the return point 1 and continued following the numerical order of the return points marked in Fig. 2.8, *i.e.* 1-2-3-4-5. We have also reported in Fig. 2.8 images extracted from the video recorded during the experiment. In Fig. 2.8(d), we computed the difference 3-3" from the image of the sample at the return points 3 and 3" (Fig. 2.8(c)), *i.e.* two points with the same strain ε but a different mechanical history. In this image, the larger the difference at a given pixel, the brighter the pixel. The same procedure was carried out between points 3 and 3' (Fig. 2.8(f)) and 1 and 1' (Fig. 2.8(g)). The grey scale histograms deduced from these differences are shown in Fig. 2.8(b).

As clearly evidenced from Fig. 2.8(a), the stress-strain curve of the section 4-5 passed through all the previous return points, thus closing all the incomplete partial loops, 3-4-3 and 1-2-1 initiated during the pathway 1-2-3-4. Fig. 2.8(d) also reveals some mesotructure differences between points 3 and 3", although these two configurations have the same compression local strain. Such a difference is also emphasized

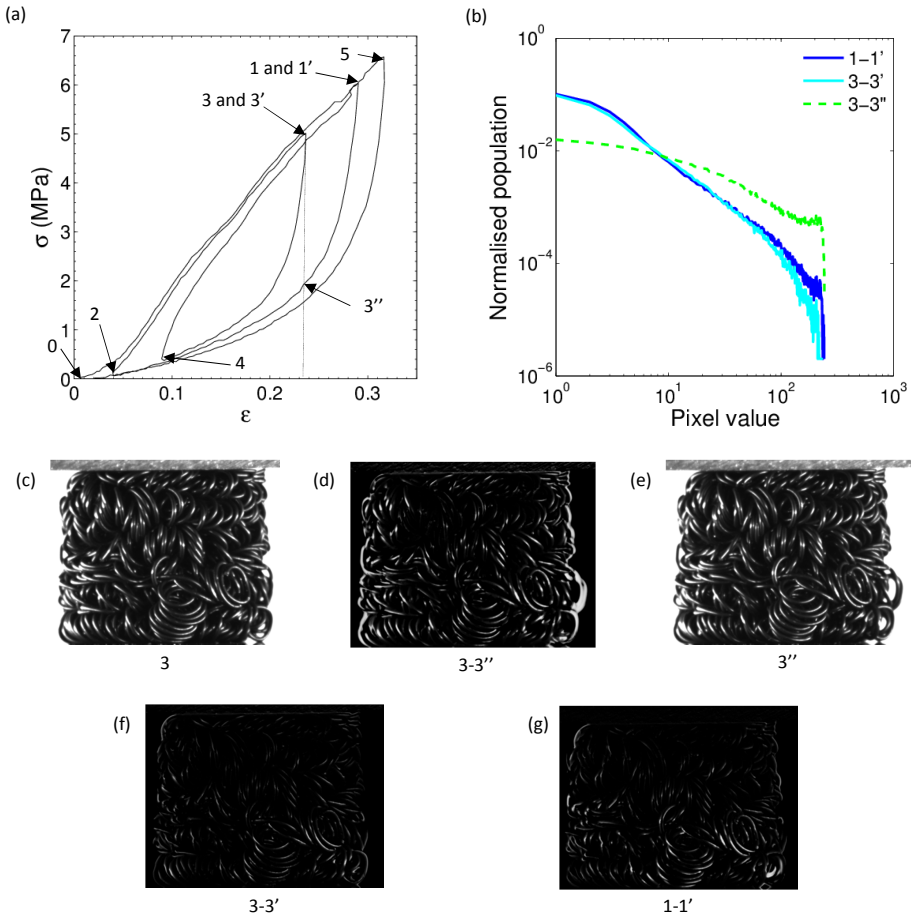


Figure 2.8 Complex cycling 0-1-2-3-4-5 performed on an entanglement to illustrate its discrete memory both on stress-strain diagram (a) and on the mesostructure (b-g) : images taken at points 1, 1', 3 (c), 3' and 3" (e) were used to compute the image differences 3-3" (d), 3-3' (f) and 1-1' (g), the grey scale histograms of which are plotted in (b).

with the rather flat grey scale histogram of Fig. 2.8(b). Both figures highlight the rearrangement of the fiber segments between the loading and unloading phases of a cycle. By contrast, images 3 and 3', as well as 1 and 1' nearly coincide, despite the complex pathways used to go from 3 to 3' and from 1 to 1'.

Similar behavior was observed in superelastic or ferroelastic bulk NiTi or CuZnAl alloys [72, 73]. As for these systems, the present entanglements follow the concept of "erasable micromemory" also known as the "return point memory" or "discrete memory" effect [40, 102, 74]. The re-assembling of the return points along the path 4-5 suggests that the mechanical behavior of the entanglements is ruled by a part of its previous deformation history. More precisely, once a subloop is initiated, the

entanglement "remembers" the subloop starting/return point, namely its reference stress-strain state and it also remembers its reference mesostructure until the subloop is closed. Moreover, once the subloop is closed, it is "forgotten" in the way that it does not affect the parent loop within which it was performed. This is illustrated along the section 4-5 after closing subloop 3-4-3 at return point 3 : the stress-strain curve follows its parent loop 1-2-1 as if no subloop had been carried out before. Similarly, the stress-strain curve follows the major loop 0-5-0 as if subloop 1-2-1 and 3-4-3 had been erased from the entanglement mechanical history. This behavior could be potentially interesting for practical applications. From a fundamental standpoint, it raises questions about the mechanics of such non-bonded entanglements that are able to memorize some of their mesostructure configurations, even after complex trajectories and rearrangements.

V.5.Hysteresis and Energy Dissipation

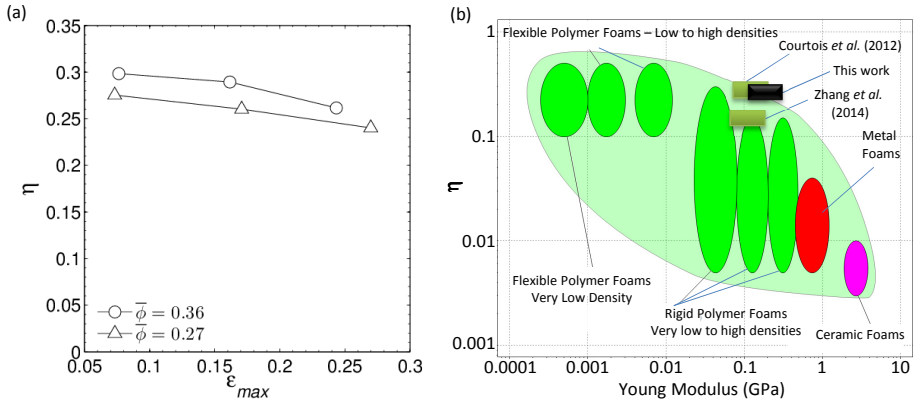


Figure 2.9 Evolution of the loss factor η with strain magnitude ε^{max} for two fiber contents $\bar{\phi}$ (a). Material map of the loss factor η versus the Young modulus (from CES [18]) (b) : metallic entanglements are represented by rectangles, with the present NiTi architectures in black.

The observed hysteresis is related to dissipative mechanisms. To estimate these effects, the energy loss E_{hys} induced during (sub)loops was computed and compared with the macroscale elastic energy E_{el} stored and released during such sequences. For each closed (sub)loop, E_{hys} was estimated from the following expression :

$$E_{hys} = \oint \sigma \mathrm{d}\varepsilon. \tag{2.8}$$

The elastic energy E_{el} was calculated by assuming that the overall stress produced by the entanglement can be seen as the sum of two contributions : a hysteretic stress σ_{hys} and a hyperelastic stress σ_{hyp}, defined as the middle (neutral) line of the major

hysteresis loop (see Fig. 2.7(b) for an illustration) [40, 33, 108]. Hence, for a (sub)loop carried out between two strain states ε_1 and ε_2, E_{el} is calculated as :

$$E_{el} = \int_{\varepsilon_1}^{\varepsilon_2} \sigma_{hyp} \mathrm{d}\varepsilon. \tag{2.9}$$

The loss factor η, *i.e.* the energy dissipation coefficient, is then computed as [108] :

$$\eta = \frac{E_{hys}}{\pi E_{el}}. \tag{2.10}$$

Fig. 2.9(a) reports the evolution of η with the strain magnitude $\Delta\varepsilon = \varepsilon_2 - \varepsilon_1$ deduced from stress-strain diagrams such as shown in Fig. 2.5 ($\varepsilon_1 = 0$ and $\varepsilon_2 = \varepsilon^{max}$). We can see that η depends on $\bar{\phi}$ then on ε^{max}. As illustrated by the material map plotted in Fig. 2.9(b), the values of η found here between 0.25 and 0.3 are higher than most of metallic foams, because of the increased friction at contacts as well as the forward and reverse stress-induced martensitic transformations. Besides, with a much higher Young modulus, the entanglements have loss factors as high as the best polymeric flexible foams. Finally, the processed materials display loss factors similar to other entangled mesostructures [24, 108] whereas they can be deformed reversibly at higher compression strains. Such architected structures are thus potentially relevant design solutions for load bearing and damping components.

V.6. Samples in state 2 : ferroelasticity and shape memory effect

By simply changing the heat treatments during sample processing and going from *state 1* to *state 2*, it is possible to tune the thermomechanical behavior of the entanglements, as illustrated in Fig. 2.10. The two stress-strain curves in Fig. 2.10(a) were obtained with samples in *state 2* compressed at two different maximum strains at the reference temperature and strain rate ($\bar{\phi} = 0.3$). The mechanical response is drastically modified compared with the stress-strain curves in *state 1* (see Fig. 2.7(a)). First, the stress levels are much lower. Second, the superelastic behavior of *state 1* is replaced by a ferroelastic behavior with large residual strains. The residual strain reaches 0.08 and 0.16 for maximum imposed strains of 0.2 and 0.27, respectively. From a phenomenological standpoint, the shape of stress-strain curves is close to those observed for similar entanglements with elastoplastic wires [108]. However, for the present NiTi wire, the shape of the stress-strain curve is not controlled by the wire ductility but rather by the low value of the transformation stress required to induce martensite within the wires (see Fig. 2.4 (b)). Thus, in *state 2*, the energy stored in the wire upon loading is not high enough to overcome the configurational and friction forces required to push back the rearrangements and the wire deformation is highly irreversible upon unloading.

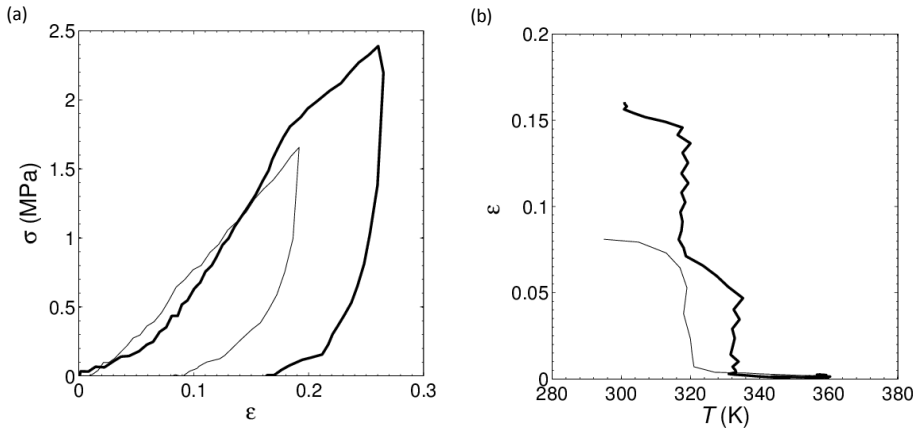


Figure 2.10 (a) Stress-strain curves and (b) strain-temperature curves showing the ferroelastic behavior of the entanglements in *state 2* and its associated shape memory effect observed upon stress-free heating after the load-unload sequence shown in (a) ($\bar{\phi}$=0.3).

The large residual strains induced at room temperature can be fully recovered simply by a stress-free heating up to 353 K, as evidenced in Fig. 2.10(b) : the samples come back to their initial shapes upon heating, thus exhibiting a large, full and unprecedented shape memory effect. Upon heating, the energy stored in the transformed zones of the wire is progressively increased according to the Clausius-Clapeyron relation and become sufficient to reverse the transformation in these zones, pushing back the rearrangements induced during the deformation at room temperature.

VI. Concluding Remarks

By entangling a single NiTi spring followed by a compaction in a close die, we were able to manufacture homogeneous porous NiTi materials with controlled mesostructures and physical properties. The manufacturing method is versatile enough to tune easily the process-induced mesostructures. For example, by changing the compaction rate or the initial wire length, samples with different fiber contents may be obtained. Also, a simple scaling of the spring dimensions would allow to tailor the pore size distribution and changing the shape of the pre-compacted entanglement may also lead to orientated specimen with anisotropic properties. Also, compared with other methods used to produce NiTi porous materials, another advantage of the present processing route is the use of only low temperature heat treatments. This avoids the formation of an oxide skin, which is detrimental to the mechanical properties of NiTi. Another advantage of the present method is that the temperature and duration of the heat treatments can be tuned to optimize the thermomechanical properties of the wire. An illustration was given here, where, by using higher temperature treatments,

we switched from a superelastic to a ferroelasticity behavior with shape memory effect.

The thermomechanical properties of the entanglements were analyzed based on compression experiments. Although other types of mechanical loadings, such as tension or shear, should be considered to complete the experimental database, the results obtained here are interesting and promising. Entanglements processed in *state 1* exhibit a remarkable superelastic behavior with negligible residual strains even after repeated cycles. This behavior is weakly strain-rate and temperature dependent. The nearly full reversion of the macroscopic strain observed upon unloading is explained by the unique association of superelastic wires together with their pronounced entanglement without strong physical bonds, allowing a reversible deformation and rearrangement of the wire during the compression without plastic deformation or rupture. This was not observed with other metal foams, nor with other entangled metallic monofilaments. Combined with the relatively high stress levels and stiffnesses observed during compression (both of them could be tailored by increasing the fiber content), this material could be used as stiffer substitutes to standard elastomeric foams. The Young modulus also corresponds to values obtained for trabecular bones, so that combined with their porous mesostructure, these entanglements could also be relevant solutions for bone implants or scaffolds.

The superelastic behavior is accompanied with a stress hysteresis, which increases with imposed strain and fiber content. Such a hysteresis is due to strain-induced rearrangements of the entanglements, to their associated friction forces, and to stress-induced forward and reverse martensitic transformations occurring in the wire. Likewise, the observed hysteretic behavior exhibits an interesting discrete memory, which needs to be clarified at the mesoscale and should also be taken into account in macroscale constitutive equations dedicated to model the mechanics of such materials. Lastly, we have shown that this pronounced hysteresis provides the entanglements with good damping properties, so that combined with their rather high stiffness, these entanglements can be viewed as suitable solutions for load bearing and damping structural components.

Switching from a superelastic to a ferroelastic state profoundly changes the mechanical behavior of the entanglements, leading to a marked degradation of both the stress-levels and strain recovery. This is directly related to an apparent plastic deformation of the wire, induced both by martensitic transformation and martensite reorientation. We have shown that the corresponding macroscale residual strain, even at levels as high as 0.16, can surprisingly be fully recovered upon stress-free heating. This full shape memory effect has never been observed with other NiTi porous materials. Once again, it is related to the unique association of NiTi wire with a high level of entanglement free of strong physical bonds.

To optimise the architecture of these materials and to better understand both their remarkable macroscale properties and their underlying complex deformation mesomechanisms, further and finer investigations are needed. In particular, performing

similar experiments with 3D *in situ* observations of the entanglement mesostructures, *e.g.* by using X-ray microtomography [67, 54, 24] and/or using discrete/finite element simulations at the fiber scale [86, 29, 11] would undoubtedly bring relevant elements towards this end.

3

Comparaison entre milieux auto-enchevêtrés fabriqués à partir de fils superélastique, élastoplastique et viscoélastique

Ce travail a été réalisé en collaboration avec O. Riu Martinez dans le cadre de son stage de M1.

Nous avons vu au chapitre 2 les caractéristiques des structures monofilamentaires en NiTi, avec notamment l'effet de la densité relative et de la température sur leur comportement mécanique. Afin de pouvoir séparer les contributions du matériau constitutif des fils de celles de la structure enchevêtrée, une série d'échantillons a été réalisée avec des matériaux filamentaires ayant des comportements mécaniques différents. Les matériaux choisis sont le Nickel-Titane (NiTi), le cuivre (Cu) et le polyamide (PA), aux comportements mécaniques respectifs superélastique, (visco)élastique et élastoplastique. Après une caractérisation des matériaux initiaux, le procédé de mise en forme utilisé précédemment est adapté à chacun des nouveaux matériaux, et leur enchevêtrement est caractérisé mécaniquement en compression et en traction avec des mesures locales des déformations axiales et latérales des enchevêtrements. L'ensemble de ces essais soulignent une très forte dissymétrie du comportement mécanique des enchevêtrements en traction et en compression, des comportements exotiques consolidants-dilatants en compression et dilatants à auxétiques en traction, qui peuvent dépendre de la nature des fils.

Sommaire

I Matériaux et méthodes expérimentales 77

I.1 Matériaux 77

I.2 Méthodes expérimentales 77

I.2.a Traitements thermiques pour la fabrication d'échantillons 77

I.2.b Analyse mécanique dynamique (DMA) 77

I.2.c Essais mécaniques quasi-statiques 77
I.2.d Mesure de déformation 78
I.3 Production d'échantillons 81
I.3.a Procédé de mise en forme des échantillons . . 81
I.3.b Échantillons produits 83
II Résultats 84
II.1 Courbes typiques de traction et compression 84
II.1.a Échantillons de polyamide 85
II.1.b Échantillons de NiTi 86
II.1.c Échantillons de cuivre 87
II.1.d Discussion 88
II.2 Influence du taux de fibre 90
II.2.a Sur le niveau de contrainte 90
II.2.b Sur les mécanismes de déformation 93
III Conclusions 97

I. Matériaux et méthodes expérimentales

I.1. Matériaux

Les trois matériaux utilisés ont été fournis par Caperlan, Spiram et Fort Wayne Metals pour respectivement le polyamide, le cuivre et le NiTi. Dans tous les cas, les matériaux se présentent sous forme de fil de section circulaire de diamètre 500 μm.

I.2. Méthodes expérimentales

I.2.a. Traitements thermiques pour la fabrication d'échantillons

Pour préparer les échantillons de polyamide (PA) et de NiTi, deux appareils de traitement thermique ont été utilisés :

⇒ **étuve Memmert**, température maximale de 200°C pour les fils de PA.

⇒ **four de traitement thermique Nabertherm**, température maximale de 1200°C pour le traitement thermique du NiTi.

Les deux matériaux sont soumis à des cycles de traitement thermique définis en sous-sous-section I.3.a pour le PA et en sous-section II.1 du chapitre 2 pour le NiTi.

I.2.b. Analyse mécanique dynamique (DMA)

Pour pouvoir choisir le traitement thermique adapté pour le PA, plusieurs caractéristiques du matériau sont à connaître : la température de transition vitreuse T_g et la température de fusion T_m qui sont les températures limites de mise en forme du PA. Pour les trouver, un échantillon de fil est soumis à une force de traction sinusoïdal dans une gamme de température choisie et la contrainte est mesurée, ce qui permet de calculer le module tangent E'.

I.2.c. Essais mécaniques quasi-statiques

Plusieurs machines de traction-compression ont été utilisés dans ce travail pour caractériser le comportement mécanique des fibres et celui des matériaux enchevêtrés :

⇒ **MTS 4M** : machine d'essai électromécanique utilisée pour la compression et la traction d'échantillons enchevêtrés (capacité 20 kN (*cf.* sous-section II.1))

⇒ **Bose Electroforce planar biaxial** : machine d'essai à motorisation électromagnétique (capacité 500 N) utilisée pour la caractérisation des fils de PA, de Cu (*cf.* sous-sous-section I.3.a de ce chapitre) et de NiTi (*cf.* sous-section II.1 du chapitre 2)

I.2.d.Mesure de déformation

Pour corriger les artefacts expérimentaux résultant du glissement des échantillons dans les mors (cas des fils et des échantillons sollicités en traction), de l'élasticité du bâti de chargement et de leurs mors ainsi que des potentiels effets de bord pouvant influer la mesure de déformation sur les échantillons sous sollicitation, nous avons développé une méthode de mesure optique pour estimer les champs de déformation locaux dans la zone de mesure. Pour cela, une caméra (Jai Pulnix) permet de suivre l'échantillon lors de l'essai mécanique, comme cela est visible sur la figure 3.1. La résolution utilisée est de 1024×1024 pixels à une fréquence de 2 Hz.

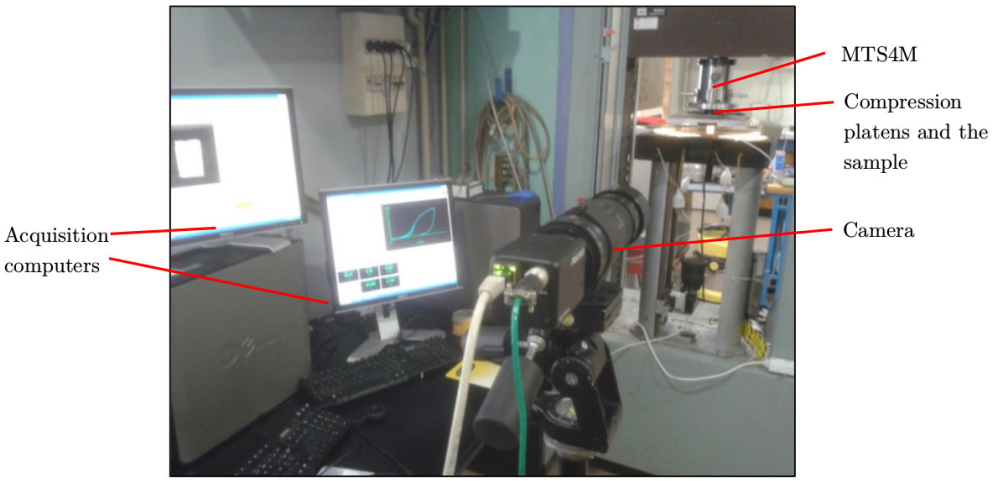


Figure 3.1 Montage de suivi optique de la déformation locale lors des essais de traction et de compression. Les ordinateurs sont synchronisés, un dédié au pilotage de la presse et l'autre à l'acquisition.

⇒ Dans le cas des tractions sur les fils, deux gouttes de peinture blanche ont été déposées dans la zone utile de ces derniers, distantes d'approximativement $l_0 = 25\ mm$ et éloignées de 5 mm des mors (cf. figure 3.2a). Les images acquises par la caméra au cours des essais sont ensuite traitées en utilisant le logiciel Fiji pour être segmentées (cf. figure 3.2b) de façon à ce qu'il ne reste plus que les deux tâches préalablement colorées sur le fil. Ces derniers sont ensuite suivis par des routines internes à Fiji ("particle analysis") permettant de déduire les positions relatives des centres de masse x_1 et x_2 des deux tâches colorées. Les déformations locales logarithmiques ou déformations de Hencky (ε_a) sont ensuite calculées selon l'équation suivante :

$$\varepsilon_a = ln\frac{|x_1 - x_2|}{|x_1^0 - x_2^0|} \tag{3.1}$$

où x_i^0 sont les positions initiales des points du fil et x_i les positions au cours de l'essai. La figure 3.2c donne par exemple l'évolution de la déformation axiale lors d'un essai de traction sur un fil de PA. Cette figure montre bien que la déformation locale ε_a est différente et inférieure à la déformation globale donnée par le déplacement de la traverse ε_g.

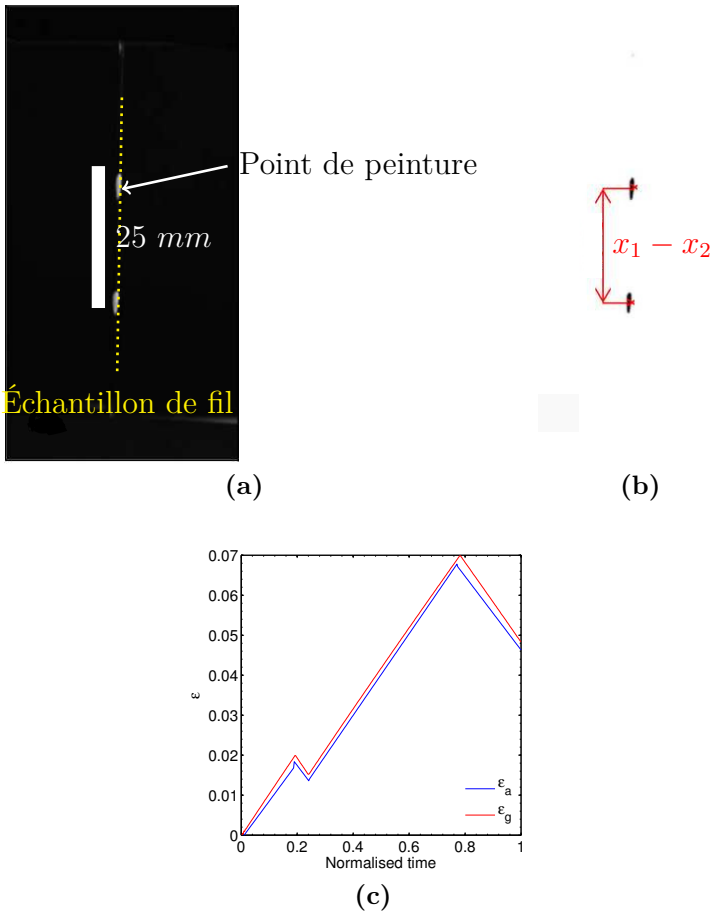


Figure 3.2 Procédure utilisée pour évaluer la déformation locale lors d'un essai de traction sur un fil de PA. (a) Image initiale (b) image après segmentation et illustration de la mesure (c) différence entre déformation locale ε_a et globale ε_g.

⇒ Dans le cas des enchevêtrements, la déformation locale est obtenue par suivi des parties les plus illuminées des fibres (cf. figure 3.3(a)). Pour cela, une première segmentation (figure 3.3(b)) de l'image initiale (figure 3.3(a)) traitée par une procédure de particule tracking (Fiji, "particle analysis") permet de suivre le centre de masse des parties illuminées et segmentées des fibres. Le film enregistré par la caméra permet de définir dans l'image initiale une zone d'intérêt dans laquelle la mesure de déformation (ε_a) sera réalisée (cf. figure 3.3(d)).

Cette zone est ensuite suivie plus précisément par le suivi de particules correspondant à ces extrémités.
En utilisant un algorithme dédié, les parties éclairées des fibres proches des bords de cette zone de l'échantillon dans la configuration initiale sont automatiquement détectées et deux d'entre elles, *i.e.* une sur chaque bord de la zone de mesure, suivies tout au long de l'essai. Comme pour les essais de traction sur fils, la déformation locale axiale est alors obtenue en utilisant les coordonnées des points suivis.
Pour pouvoir mesurer les déformations latérale et volumique des échantillons, une deuxième segmentation de l'image est faite de telle sorte que le contour de l'échantillon soit bien défini, comme montré dans la figure 3.3(c). Le diamètre le long de l'axe est alors suivi en calculant la différence de coordonnées entre les points extrêmes de chaque rangée de l'image, comme illustré sur la figure 3.3(d). La déformation diamétrale moyenne ε_d est alors calculée en suivant l'équation suivante :

$$\varepsilon_d = ln \frac{\frac{1}{P} \sum_{i=1}^{P} d_i}{\frac{1}{Q} \sum_{j=1}^{Q} d_j} \tag{3.2}$$

où P et Q représentent les largeurs en pixel respectivement des images actuelles et initiales et d_i le diamètre dans chacune des rangées de pixels (figure 3.3d)).
La déformation volumique associée à la compression est calculée à partir des déformations axiale ε_a et diamétrale ε_d comme suit :

$$\varepsilon_\nu = 2\varepsilon_d + \varepsilon_a \tag{3.3}$$

en supposant que les mésostructures des échantillons présentent une symétrie de révolution dont l'axe est porté par celui des essais de traction-compression. Nous avons vérifié au cours de nos essais que pour la plus grande partie des échantillons testés, cette hypothèse était raisonnable et que la déformation latérale des enchevêtrements se produisait de manière axisymétrique.

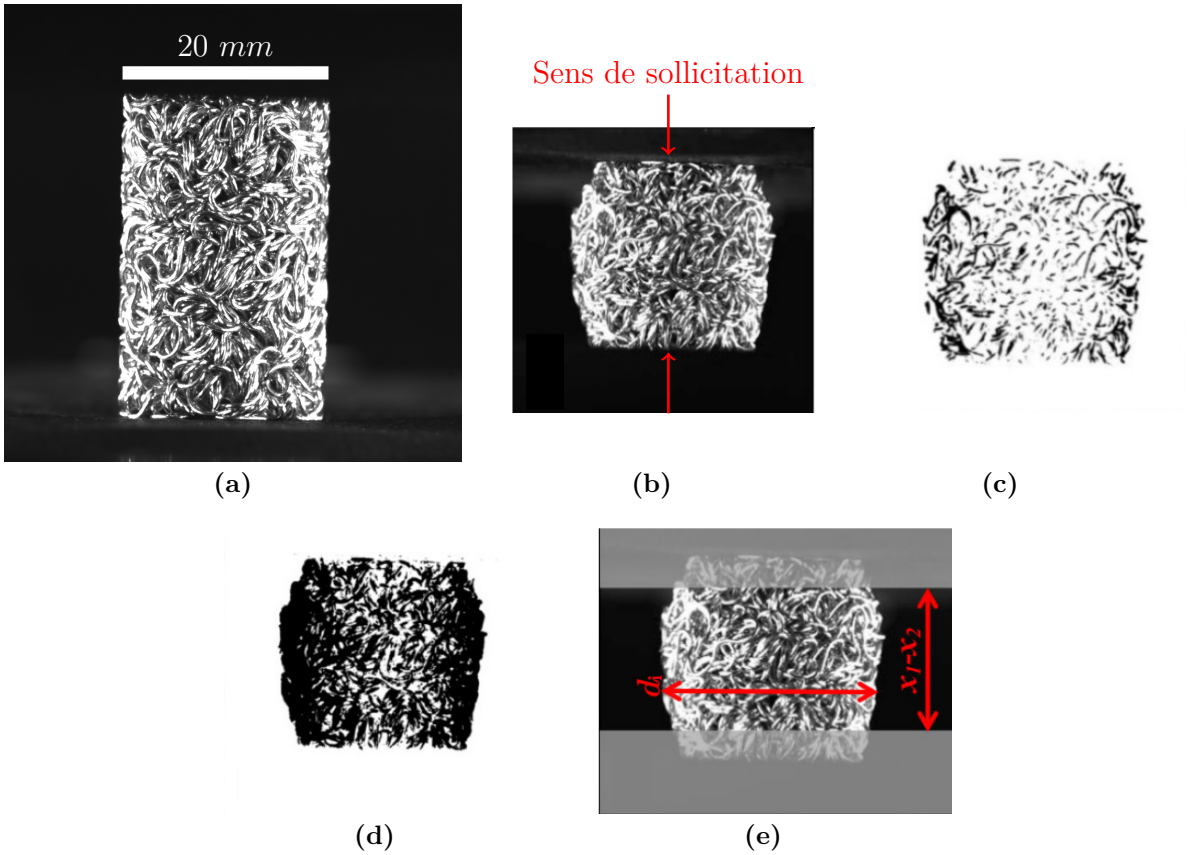


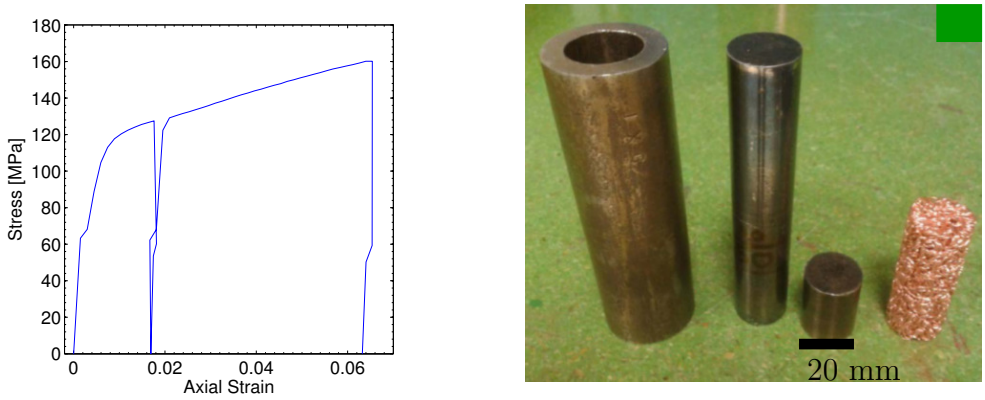
Figure 3.3 Exemple de la méthode de mesure des déformations axiale et transverse d'un enchevêtrement de cuivre (k12) en compression : (a) échantillon initial (b) image après compression (c) image après la première segmentation pour déterminer ε_a (d) image après la seconde segmentation pour déterminer ε_d (e) schéma de la découpe des images suivant la déformation locale et de la mesure du diamètre local de l'échantillon d_i.

I.3.Production d'échantillons

I.3.a.Procédé de mise en forme des échantillons

Comme nous l'avons vu précédemment (chapitre 1), les ressorts peuvent être produits et enchevêtrés par simple déformation plastique pour des matériaux élastoplastiques comme l'aluminium ou le cuivre (cf. figure 3.4a , [98]). Cette méthode a donc été suivie directement et sans difficulté majeure pour préparer ces échantillons de fil de cuivre autoenchevêtré (figure 3.4b), au diamètre de ressort de 3.5 *mm*.

Nous avons montré au chapitre précédent que cette méthode a aussi pu être adaptée avec succès à des matériaux superélastiques comme le NiTi (cf. figure 2.1), en



(a) **(b)**

Figure 3.4 (a) Courbe de traction d'un fil de cuivre (b) Materiel utilisé pour la compaction des échantillons. De gauche à droite : matrice, piston supérieur, piston inférieur, échantillon de cuivre fini.

utilisant deux traitements thermiques HT1 et HT2 (*cf.* chapitre 2, sous-section II.3) pour former les ressorts et figer la mésostructure et les propriétés finales des enchevêtrements. Pour pouvoir l'adapter à des matériaux polymères thermoplastiques comme le polyamide, il est nécessaire de disposer des couples de température et temps de traitement thermique nécessaires à la mise en forme et ne dégradant pas le polymère.

En utilisant les données de la DMA du fil de PA regroupées dans la figure 3.5a, une plage de température de mise en forme du PA a pu être sélectionnée. Ainsi, nous avons balayé des traitement thermiques à des températures très largement au-dessus de T_g (60°C) mais en-dessous de T_m (212°C) , *i.e.* des températures de 100, 120, 140,160 et 200°C suivi par une trempe à l'eau. En utilisant des temps de traitement thermique de 1, 2, 5, 8, 10, 12, 15, 20, 25, 60 ou 120 minutes, un optimum du traitement thermique a pu être déterminé. Cet optimum correspond à des traitements de 15 min à 160°C (pour fabriquer le ressort) puis 60 min à 160°C (pour réaliser l'enchevêtrement). Il conduit à un temps de mise en œuvre minimum et dans le même temps un retour élastique minimum.

La figure 3.5b montre le comportement en traction du fil dans son état initial, après le premier et le second traitements thermiques utilisés pour fabriquer les enchevêtrements : les traitements thermiques adoucissent le comportement des fils de PA qui, au final et dans les gammes de déformation qui nous intéressent ($< 1\%$), présentent un comportement élastique avec un module d'Young de l'ordre de 2.9 GPa.

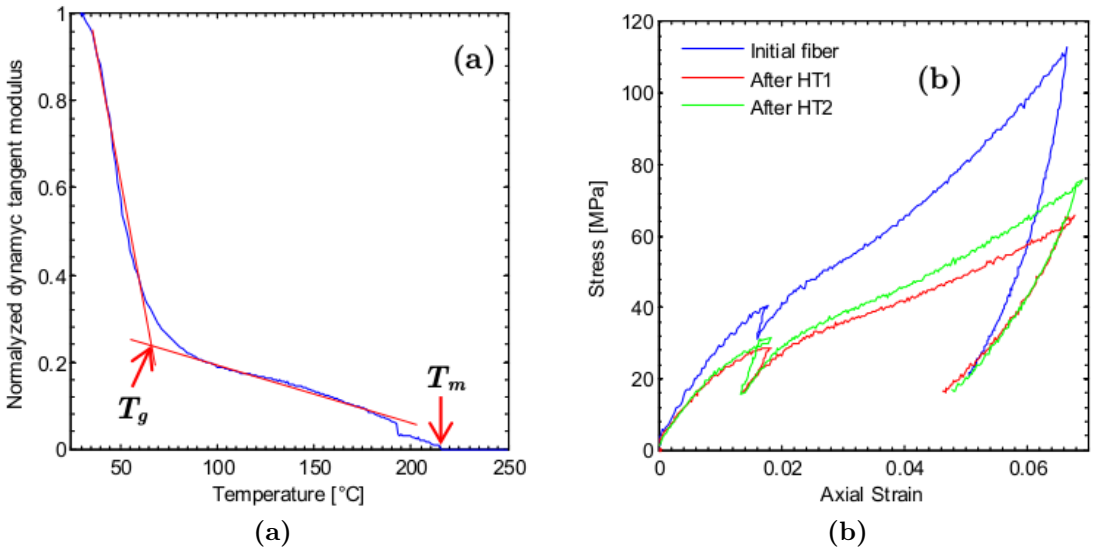


Figure 3.5 Comportement thermomécanique des fils de PA : (a) évolution du module tangent normalisé E'/E'$_0$ en fonction de la température mesurée par DMA (b) courbe de traction de fil initial, après le premier (HT1, 15 min à 160°C) et le second traitement thermique (HT2, 60 min à 160°C).

I.3.b.Échantillons produits

Différents échantillons à base de fil de NiTi, PA et Cu ont été produits en suivant les procédés de fabrication décrits ci-dessus (*cf.* tableaux 3.1, 3.2 et 3.3). Les échantillons ont été produits avec des fractions volumiques allant de $\phi = 0.25$ à $\phi = 0.58$ afin de pouvoir réaliser des essais de compression et de traction. Tous les échantillons sont fabriqués avec un diamètre de 20 *mm*. Ils ont une hauteur de 35 et 45 *mm* respectivement pour les essais de compression et de traction. Notons que pour réaliser

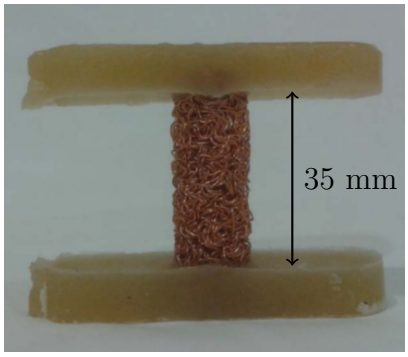


Figure 3.6 Échantillon de cuivre préparé pour un essai de traction.

les essais de traction, les extrémités supérieure et inférieure ($\sim 5\ mm$) des échantillons sont noyées dans une résine polyester thermodurcissable, comme montré dans la figure 3.6 de manière à ce que la partie émergée des éprouvettes mesure 35 mm. De cette manière, après polymérisation, les extrémités de l'échantillon peuvent être facilement maintenues dans les mors.

PA	N2	N3	N6	N8	N9	N11	N12	N13
$h\ (mm)$	35	45	45	35	45	35	45	45
$\phi(\%)$	25	25	28	30	30	35	35	40

TABLE 3.1: Liste des échantillons de PA

NiTi	3	5	1	6
$h\ (mm)$	35	45	35	45
$\phi(\%)$	27	27	36	36

TABLE 3.2: Liste des échantillons de NiTi

Cu	k2	k3	k5	k6	k8	k9	k12	k14	k15	k16	k18	k17
$h\ (mm)$	35	45	35	45	35	45	45	35	35	45	35	35
$\phi(\%)$	25	25	28	28	30	30	35	33	40	40	50	58

TABLE 3.3: Liste des échantillons de Cu

II.Résultats

II.1.Courbes typiques de traction et compression

Chaque échantillon a été soumis à un cycle uniaxial de compression ou de traction à une vitesse de déplacement de $|\dot{h}| = 5\ mm/min$. La déformation imposée suit un cycle composé de boucles de charge-décharge avec des amplitudes de déformation croissantes $|\varepsilon_g| = 5, 10, 20$ et 30%.

Quatre mesures principales sont utilisées pour analyser le comportement mécanique des échantillons : la contrainte axiale nominale $\sigma = F/S_0$ (avec F la force de traction ou compression mesurée par la cellule de force de la presse et S_0 la section droite initiale de l'échantillon), les déformations axiale locale ε_a, diamétrale ε_d et volumique ε_v (*cf.* sous-sous-section I.2.d de ce chapitre). Pour pouvoir comparer les tendances observées sur les différents matériaux, les échantillons des les paragraphes suivants présentent une densité relative ϕ d'environ 0.35.

II.1.a.Échantillons de polyamide

Les échantillons présentés pour le PA sont les échantillons dénommés N11 et N12 à $\phi = 0.35$. N11 a été testé en compression et N12 en traction. Les courbes issues des différentes analyses sont respectivement sur la colonne gauche et sur la colonne droite.

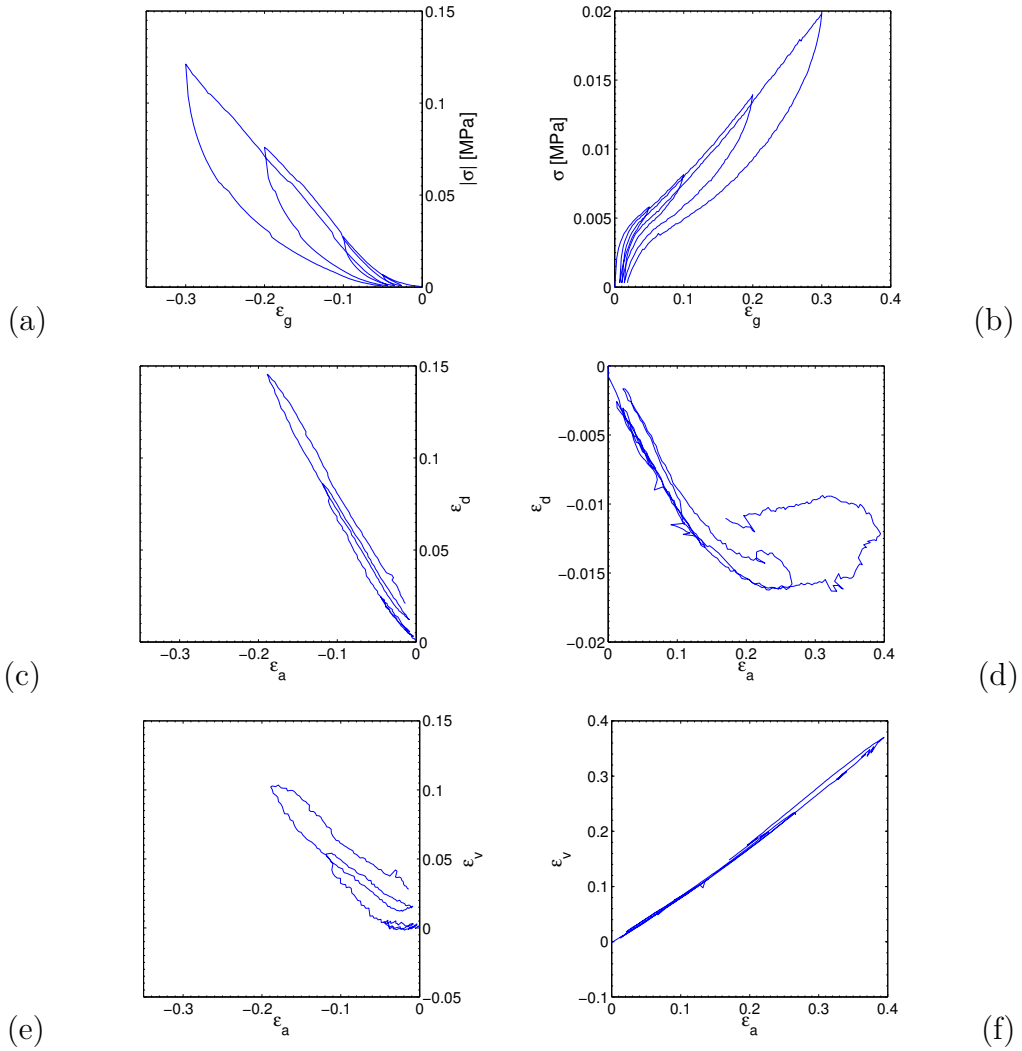


Figure 3.7 Essais de compression (gauche, N11) et traction (droite, N12) sur deux échantillons de polyamide à $\phi = 0.35$. Évolution de la contrainte axiale σ en fonction de la déformation globale (a,b), de la déformation diamétrale ε_d en fonction de la déformation locale (b,c) et de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation locale (e,f).

II.1.b.Échantillons de NiTi

Les échantillons de NiTi analysés et présentés ici sont les échantillons nommés NiTi1 et NiTi6 dans la tableau 3.2. Les deux échantillons présentent une densité relative $\phi = 0.36$ et ont été respectivement testés en compression (NiTi1) et en traction (NiTi6), comme illustré sur les parties gauche et droite de la figure 3.8.

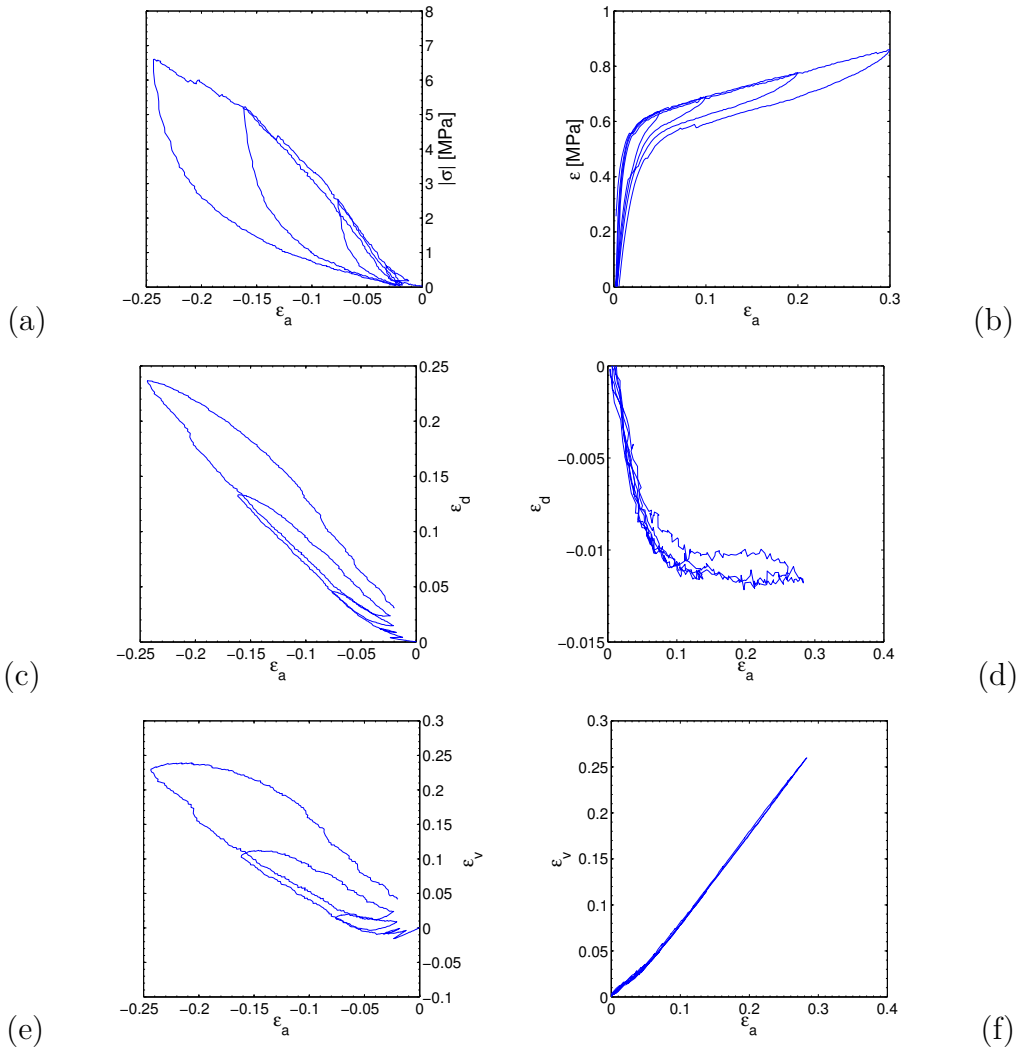


Figure 3.8 Essais de compression (gauche, NiTi1) et traction (droite, NiTi6) sur deux échantillons de NiTi à $\phi = 0.36$. Évolution de la contrainte axiale σ en fonction de la déformation locale en compression et globale en traction (a,b), de la déformation diamétrale ε_d en fonction de la déformation locale (b,c) et de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation locale (e,f).

II.1.c.Échantillons de cuivre

Les échantillons de cuivre analysés sont les échantillons k12 et k14 à $\phi = 0.35$ et $\phi = 0.33$ respectivement. Ils ont été testés en compression (k14) et en traction (k12) et les résultats sont respectivement illustrés dans les colonnes gauche et droite de la figure 3.9.

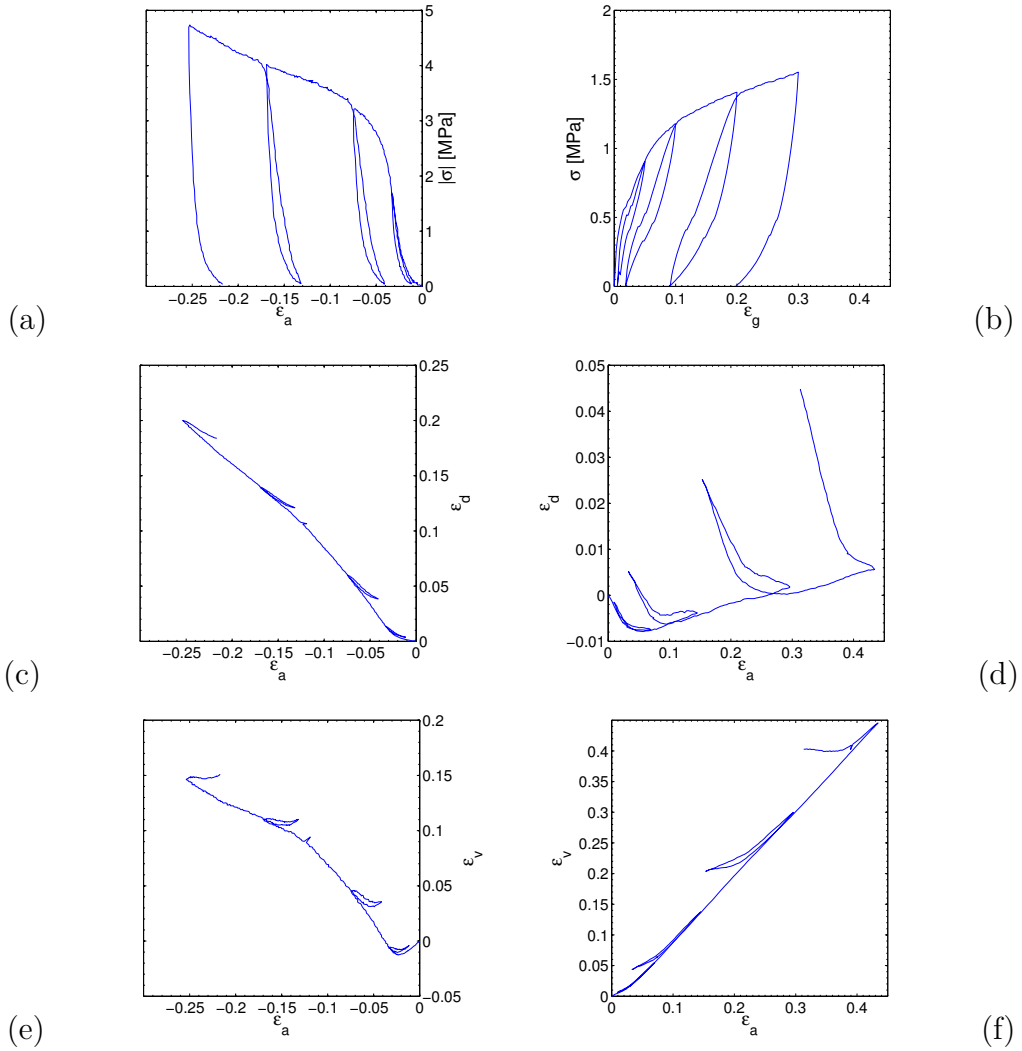


Figure 3.9 Essais de compression $\phi = 0.33$ (gauche, k14) et traction $\phi = 0.35$ (droite, k12) sur deux échantillons de cuivre. Évolution de la contrainte axiale σ en fonction de la déformation globale (traction) ou locale (compression) (a,b), de la déformation diamétrale ε_d en fonction de la déformation locale (b,c) et de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation locale (e,f).

II.1.d.Discussion

Pour pouvoir comparer les courbes issues des essais mécaniques précédents, les figures 3.7, 3.8 et 3.9 sont rassemblées dans une unique figure (figure 3.10) : pour la courbe contrainte-déformation, les contraintes affichées ont été normalisées par le module d'Young issu des essais de traction de chacun des matériaux, soit 2 GPa pour le PA (*cf.* figure 3.5(b)), 60 GPa pour le NiTi (*cf.* figure 2.4) et 126 GPa pour le cuivre (*cf.* figure 3.6(a)).

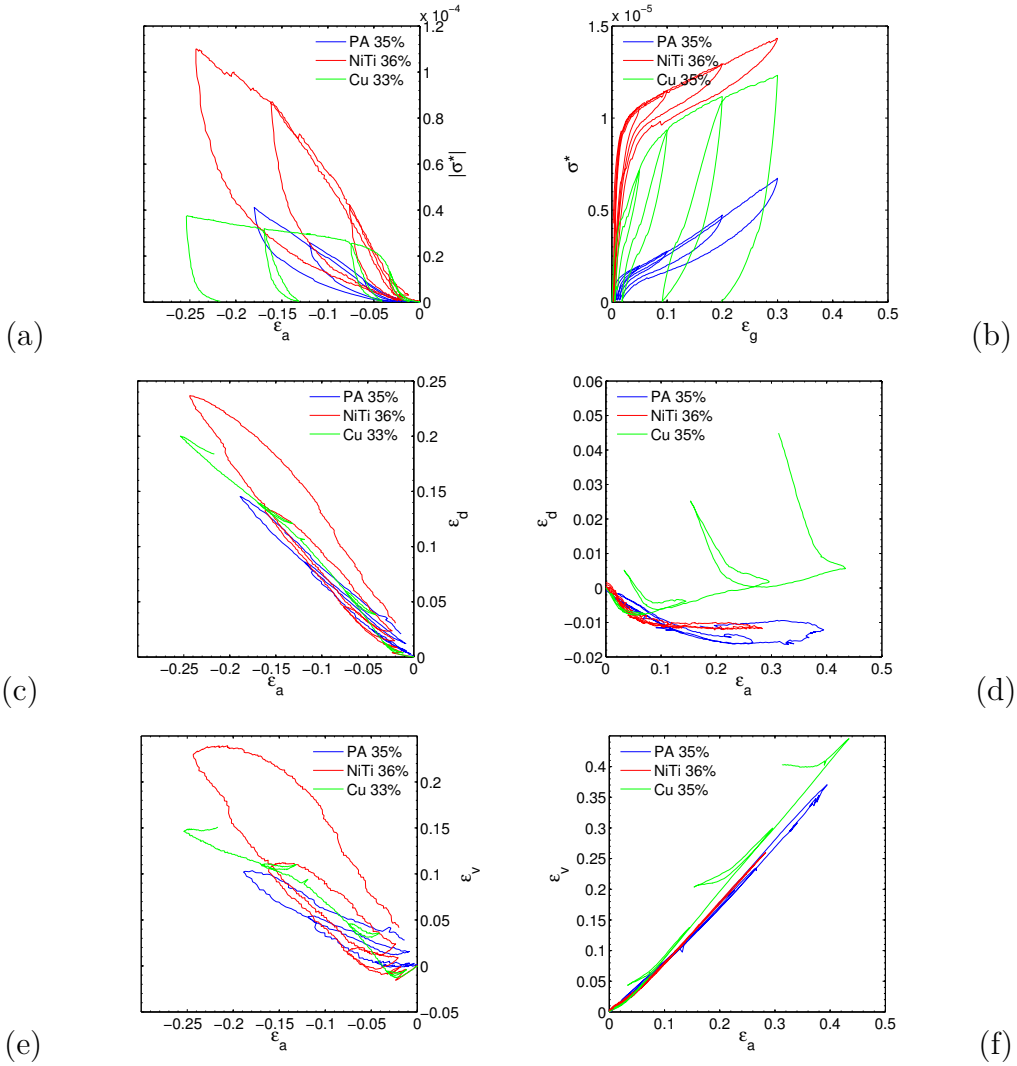


Figure 3.10 Comparaison des échantillons des figures 3.7, 3.8 et 3.9 : (a,b) contrainte de compression en fonction de la déformation locale et de traction en fonction de la déformation globale (c,d) déformation diamétrale en fonction de la déformation locale (e,f) déformation volumique en fonction de la déformation locale.

⇒ Comme ces figures (3.10) le montrent, les courbes de contrainte-déformation présentent des réponses macroscopiques variant considérablement selon le matériau constitutif de la fibre : les échantillons faits à partir de fils de PA et de NiTi présentent des propriétés semblables à celles des caoutchoucs, avec des déformations résiduelles très faibles et une importante hystérésis sur la courbe mécanique. À l'inverse, l'échantillon constitué de fil de cuivre montre un comportement mécanique clairement élastoplastique quel que soit le sens de chargement (traction et compression) avec des retours élastiques faibles et des déformations résiduelles importantes. Cette différence est imputable au comportement du matériau constitutif de la fibre. Dans les plages de déformation testées, les courbes ainsi présentées tendent à montrer que les fils de PA et NiTi sont déformées de manière réversible, essentiellement dans leur domaine élastique, voire superélastque dans le cas des fils de NiTi (*cf.* chapitre précédent). À l'inverse, la plasticité des fils de cuivre est très vite activée dans le cas des échantillons faits de cuivre, de part la faible limite élastique du cuivre, de l'ordre de 100 MPa. Comme dans les essais de Tan et collab. [98] sur des systèmes élastoplastiques, le domaine réversible des enchevêtrements existe uniquement pour de faibles déformations, où les fils des échantillons se réarrangent sans trop se déformer : 3% en compression et 7% en traction.

⇒ Les différentes courbes de traction et de compression montrent aussi une importante dissymétrie entre la traction et la compression, avec des niveaux de contrainte de compression 2 à 10 fois supérieurs à ceux de la traction, quel que soit le matériau constitutif de la fibre. Cette dissymétrie peut s'expliquer par les mécanismes de déformation mis en jeu : les milieux fibreux subissent classiquement de forts réarrangements, ce qui fait augmenter le nombre de contacts, puis des blocages de fibres en compression (Poquillon et collab. [79]). En revanche, pour la traction, ces blocages sont moins marqués (ceci est lié à la forte augmentation de ε_v) et les fibres vont êtres libres de tourner et de se déplacer les unes par rapport aux autres. À partir du moment où les ressorts sont alignés dans le sens de la traction, les ressorts ne seront plus sollicités en rotation mais en traction seulement, et la raideur du milieu sera plus faible.

⇒ La déformation diamétrale en traction ((d) de la figure 3.10) montre un comportement intéressant, avec la présence de deux zones distinctes pour tous les matériaux. Comme pour les matériaux denses et les matériaux fibreux classiques, la première partie correspond à une importante diminution de la section du matériau. À une déformation critique ($\varepsilon_d = 0.15$ pour le PA, 0.10 pour le NiTi et 0.05 pour le Cu), la contraction s'arrête et laisse place à une augmentation de la section particulièrement visible dans le cas du cuivre et dans une moindre mesure du PA. Ce comportement est appelé auxétique et est parfois observé dans des mousses ou des matériaux cellulaires organisés (Gibson et Ashby [38]), ou encore dans certains matériaux fibreux comme les papiers (Hall et collab. [42]). Cette contraction-dilatation diamétral en deux étapes sera investiguée

plus détails en II.2 en analysant l'influence de la densité relative. Il est aussi à mettre en avant que pour le cuivre, la décharge élastoplastique s'accompagne d'une augmentation drastique du diamètre des échantillons : la variation totale de diamètre ε_d est de 0.06 en fin d'essai, dont 0.04 à la décharge.

⇒ La déformation volumique des trois types de matériau en compression (figure 3.10(e)) montre systématiquement deux régimes, avec une première consolidation entre $\varepsilon = 0$ et $\varepsilon = 0.03$, attendue pour la majorité des milieux denses et poreux. Cette partie correspond à une compaction de l'échantillon avec un réarrangement du fil et une augmentation du nombre de contacts (Poquillon et collab. [79]). À partir d'une déformation critique, la déformation volumique ε_v augmente pour tous les matériaux testés. Cette dilatance est un comportement classique des milieux granulaires lors de mise en compression ou de cisaillement (Bolton [16]). Dans notre cas, la dilatance atteint des valeurs très importantes (10 à 20% selon les matériaux). À la décharge, le NiTi et le PA montrent une réversion des phénomènes précédents avec la présence d'hystérésis . Dans le cas du cuivre, l'importante déformation plastique des fils ne permet pas, pour la plupart des conditions d'essai étudiées de disposer d'un cycle, même si le faible retour montre une diminution de la déformation volumique.

⇒ Il est aussi à noter qu'en compression (*cf.* figure 3.10(e)), les déformations volumiques passent d'un comportement consolidant à un comportement dilatant à une déformation axiale correspondant à la déformation de changement de pente sur les courbes mécaniques (*cf.* figure 3.10(a)), ce qui tend à montrer que la mécanique et la mésostructure sont intimement liées en compression. En traction (*cf.* figure 3.10(f)), ces liens semblent moins visibles, avec l'absence de concordance entre la mécanique et la déformation volumique des échantillons.

II.2.Influence du taux de fibre

II.2.a.Sur le niveau de contrainte

Les courbes de contrainte-déformation ont été regroupées dans la figure 3.11 pour différentes densités relatives ϕ et pour chacun des matériaux, en compression (gauche) et en traction (droite). Pour pouvoir comparer les résultats, les évolutions des contraintes à des déformations de $\varepsilon_a = 0.10$ et 0.25 ont également été regroupées dans la figure 3.12 pour la traction et pour la compression. À partir de ces données, un certain nombre de commentaires peuvent être faits :

⇒ De façon générale, l'augmentation de la fraction volumique de fibre dans un milieu entraîne l'augmentation des contraintes lors d'essais mécaniques. Il y a cependant une exception à ce constat dans nos données. Les données du NiTi semblent présenter des inconsistances en traction (*cf.* figure 3.11(d)) avec une contrainte plus forte pour la densité la plus faible, alors que ce n'est pas le cas

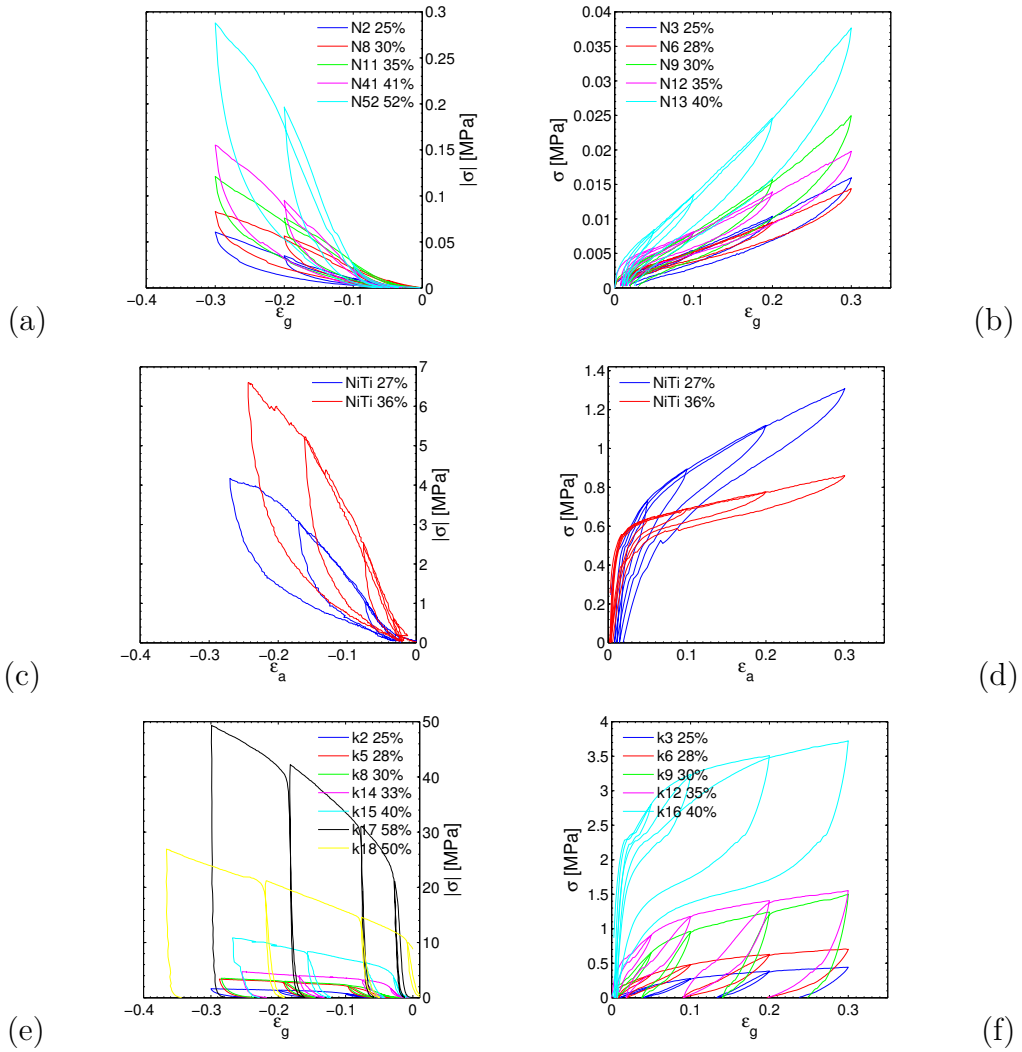


Figure 3.11 Compilation des courbes de contrainte-déformation pour tous les échantillons utilisés dans cette partie illustrant l'influence du taux de fibre. (a) PA compression (b) PA traction (c) NiTi compression (d) NiTi traction (e) Cu compression (f) Cu traction.

pour la compression (*cf.* figure 3.11(c)) : ces essais doivent être refaits pour être (in)validés.

⇒ Comme le montre la figure 3.12, l'augmentation des contraintes en traction et en compression avec la densité relative est plutôt linéaire dans la gamme de densité 0.25-0.35. Cela a déjà été mis en évidence au chapitre précédent. En revanche, si l'on prend une gamme de densité relative plus grande, comme c'est le cas des échantillons de cuivre, cette augmentation perd sa linéarité et semble suivre une loi puissance comme pour Masse et collab. [67], Toll [100], van

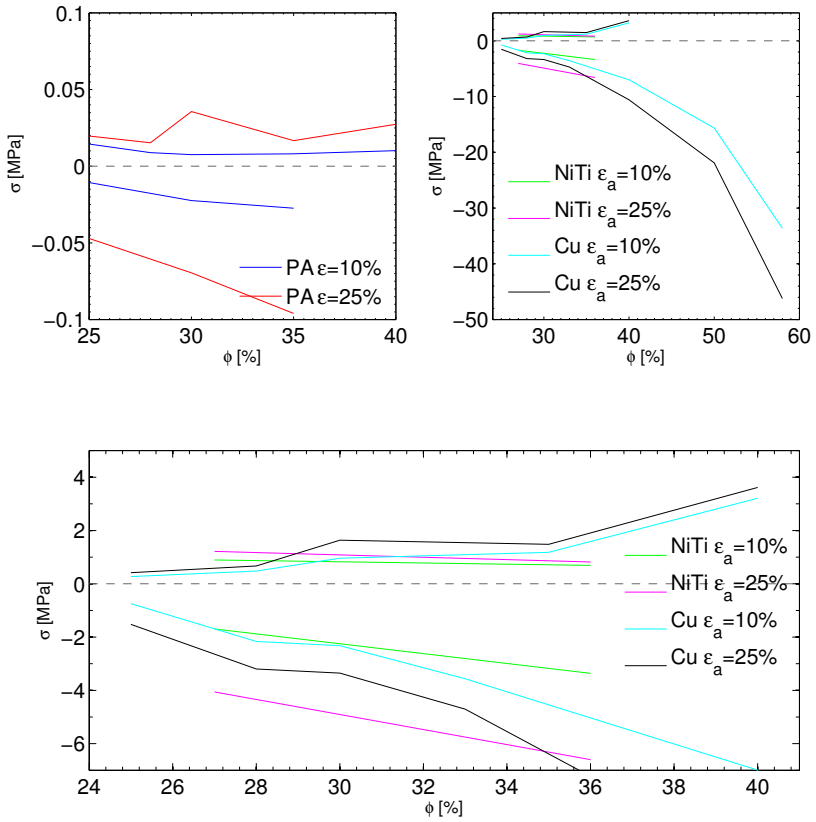


Figure 3.12 Effet de la fraction volumique de fibre ϕ sur la contrainte de traction et de compression par comparaison de leur valeur à ε_a =0.10 et 0.25 de déformation pour tous les échantillons. (a) échantillons de PA (b) échantillons de cuivre et de NiTi (c) détail de la région où les échantillons de Cu montre le même comportement que ceux en NiTi.

Wyk [107] : elle peut être attribuée à une augmentation non linéaire du nombre de contacts au sein des enchevêtrements avec la fraction volumique de fibres (ϕ) Toll [99], rendant plus difficiles les déformations des fils.

⇒ L'augmentation du niveau de contrainte avec ϕ lors de la charge est aussi accompagnée d'une augmentation de l'hystérésis, comme la figure 3.11 le met bien en avant. Cette tendance est similaire à celle esquissée dans le chapitre précédent : elle est à mettre d'abord au compte de l'augmentation des contacts dans les échantillons avec ϕ, mais aussi aux mécanismes de déformation dans les fils : superélasticité (NiTi), viscoélasticité (PA) et élastoplasticité (Cu).

⇒ Dans la plupart des situations, la forme de la courbe mécanique n'est pas

modifiée de façon drastique par la densité relative du milieu. Les échantillons de fils de PA et de NiTi présentent un comportement proche de celui de nombreux élastomères (grandes déformations avec une évolution non linéaire, présence d'hystérésis et de très faibles déformations résiduelles), alors que les échantillons de cuivre montrent un comportement proche de celui de la plupart des mousses élastoplastiques (Gibson et Ashby [38]).

⇒ Dans le cas des échantillons de cuivre en traction et à haute densité relative ($\phi = 0.35$ et $\phi = 0.40$), le retour élastique observé durant la décharge est surprenant et très important. Cela est particulièrement vrai pour l'échantillon à $\phi = 0.40$: son comportement mécanique est proche de celui de la superélasticité, avec un retour élastique quasi-complet à la décharge, même après une déformation maximale imposée de $\varepsilon_a = 0.30$. En tenant compte du comportement fortement élastoplastique du fil de cuivre aux faibles déformations, le comportement mécanique de cet enchevêtrement est particulièrement étonnant et n'a encore jamais été observé auparavant. Probablement, pendant les essais de traction, l'enchevêtrement considéré a dû être suffisamment résistant pour emmagasiner suffisamment d'énergie élastique (de tension dans le fil par exemple) durant la charge pour renverser les déformations au cours de la décharge de l'échantillon (*eg.* torsion et flexion plastique), mais aussi les phénomènes de friction entre fibres qui ont été induits aux contacts lors du chargement.

II.2.b.Sur les mécanismes de déformation

Le rôle du taux de fibres sur les mécanismes de déformation des milieux enchevêtrés est montré sur les figures 3.13 et 3.15. La figure 3.13(c) présente l'évolution de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation axiale ε_a pour plusieurs échantillons à divers densités relatives en compression, dont quelques courbes aux densités relatives extrêmes sont montrées sur la partie (b) de la figure 3.13. Toutes ces courbes montrent une consolidation ε_{con} et une dilatance ε_{dil}, dont les amplitudes sont mesurées comme indiqué sur la figure 3.13(a). Cette analyse permet de faire plusieurs remarques :

⇒ Quelques soient la fraction volumique de fibres et le matériau constitutif du fil, les premières étapes de la compression sont toujours associées à une consolidation qui n'excède jamais 5%.

⇒ Pour les fibres (super)élastiques (NiTi et PA), les déformations volumiques résiduelles sont faibles (*cf.* figure 3.13(a)). Pour le cuivre, la tendance inverse est observée : quelle que soit la densité, la déformation volumique de l'échantillon est majoritairement irréversible (*cf.* figure 3.13(b)). Tout comme la déformation axiale ε_a, la déformation volumique montre un faible retour élastique à la décharge.

⇒ Pour le PA, le NiTi et le cuivre, à $\phi \leq 40\%$, la dilatance est bien visible. Quelle que soit la densité considérée, ε_{dil} varie entre 0 et 0.2. À densité donnée, ε_{dil}

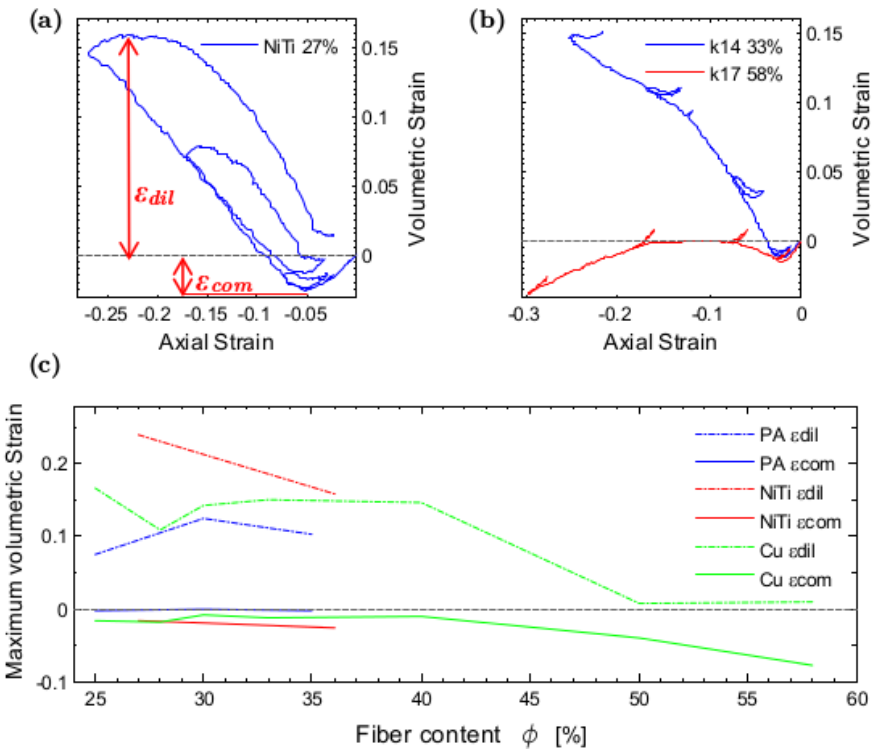


Figure 3.13 Effet de la densité relative sur les mécanismes de déformation des échantillons en compression : (a) définition de la mesure de ε_{dil} et ε_{com} (b) comparaison des déformations volumiques en fonction des mécanismes de déformation pour un échantillon de cuivre en compression, (c) évolution de ε_{dil} et ε_{com} en fonction de la densité relative.

est plus important pour le NiTi que pour les autres matériaux. De plus, les mesures expérimentales montrent une faible décroissance de la dilatance avec l'augmentation de la densité.

⇒ Pour des échantillons plus denses (*i.e.* pour $\phi > 40\%$, donc en cuivre) , la dilatance ε_{dil} semble disparaître. Cela est illustré par la figure 3.13(b) qui montre que, pour un échantillon de cuivre à $\phi = 58\%$, la déformation volumique n'est jamais positive : après la consolidation attendue pour ces milieux, une faible dilatance apparaît, sans pour autant dépasser le volume initial. Cette étape est ensuite suivie par une autre partie de consolidation, qui aboutit à une déformation volumique $\varepsilon_{com} = 0.1$ pour $\varepsilon_a = 0.3$. Ainsi, pour ces échantillons, les mécanismes de déformation sont très différents de ceux présents à plus faible densité relative. Ceci est mis en avant de façon expérimentale par la figure 3.14 montrant la différence de mécanisme de déformation avec des échantillons en cuivre à taux de fibres différent. L'échantillon à faible taux de fibres montre dans la zone centrale (*ie.* celle où sont mesurées ε_a et ε_v) une augmentation du

volume remarquable et quasi-homogène. D'un autre côté, pour le plus haut taux de fibres, l'échantillon ne peut suivre un tel mode de déformation à cause de la densité de fibre initiale : la présence de fibres très proches les unes des autres empêche les réarrangements qui permettent l'expansion du diamètre dans les densité relatives plus faibles. De ce fait, le comportement de ces milieux à haute densité se rapprochent plus des milieux granulaires avec la présence de bandes de cisaillement.

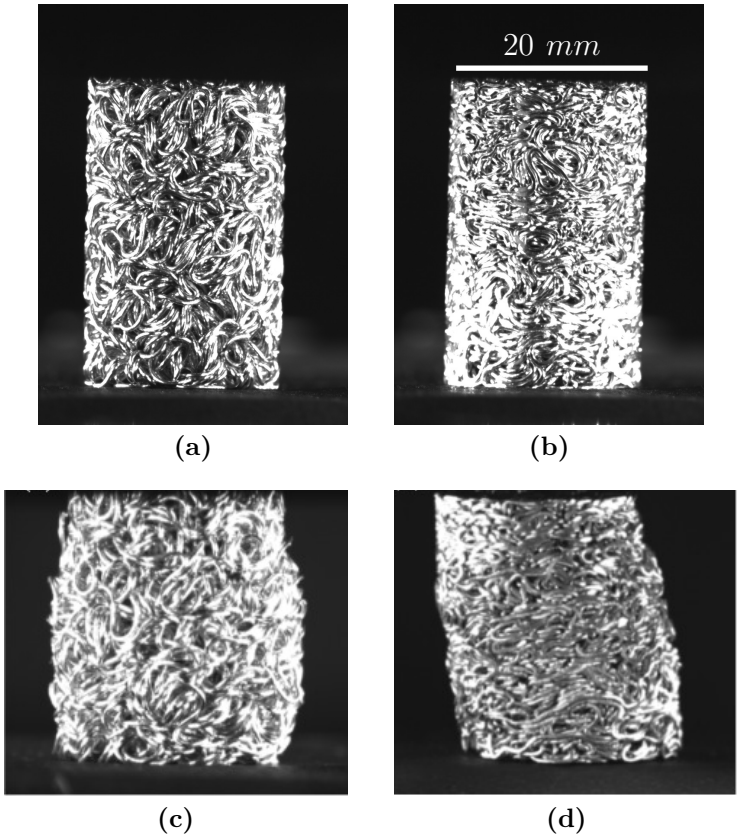


Figure 3.14 Différence de mécanismes de déformation dans les échantillons de cuivre en compression. Déformation typique des faibles densité relatives ($\phi = 0.30$) : avant (a) et après (c) compression des enchevêtrements avec effet de bord et expansion homogène dans la zone centrale. Mécanisme de déformation à plus haut taux de fibre ($\phi = 0.58$) : avant (b) et après (d) compaction de fibres avec apparition de bandes de cisaillement en travers de l'échantillon. Les deux images sont prises à $\varepsilon_g = 0.3$.

Pour la traction comme pour la compression, la contraction ε_{con} et l'expansion ε_{exp} latérale sont estimées, comme montré sur la figure 3.15(a) et quelques points sont à souligner :

⇒ Quels que soient le taux de fibres et la nature de la fibre considérés, les échan-

tillons montrent lors de la traction une première partie avec une importante contraction. Cette contraction varie selon les échantillons entre $\varepsilon_{con} = 0.005$ et $\varepsilon_{con} = 0.05$. La figure 3.15(c) montre que lorsque le taux de fibres augmente, la contraction subie par l'échantillon diminue. Ceci est facilement interprétable par la mésostructure de l'enchevêtrement : lors de la première partie de la traction, les ressorts constitutifs de l'enchevêtrement sont suffisamment tirés pour pouvoir s'interpénétrer et ainsi diminuer le diamètre global de l'échantillon.

⇒ L'augmentation du taux de fibres induit une augmentation de la déformation latérale ε_{exp} et présente ainsi un comportement auxétique comme montré dans la figure 3.15(c). Ce comportement auxétique est faiblement marqué pour le NiTi et le PA avec une faible expansion (0 à 0.002), mais plus visible pour le Cu ($\varepsilon_{exp} = 0.05$ pour $\varepsilon_a = 0.3$).

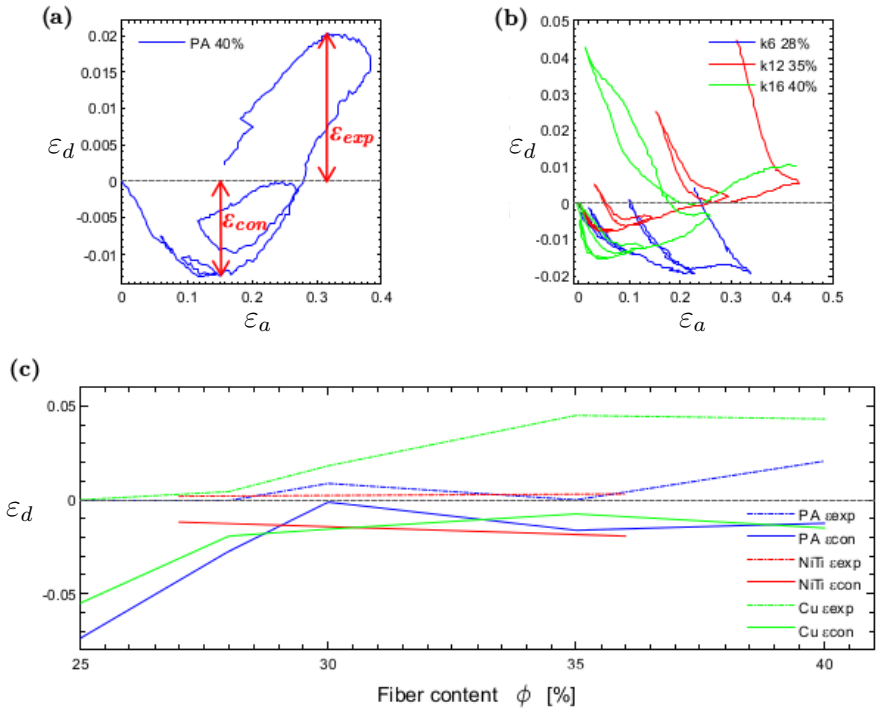


Figure 3.15 Effets du taux de fibres ϕ sur la déformation diamétrale des échantillons en traction (a) méthode de mesure de ε_{exp} et ε_{con} sur une courbe $\varepsilon_d - \varepsilon_a$ (b) comparaison des déformations diamètrales entre trois échantillons de Cu sur la plage de densité étudiée (c) évolution de ε_{exp} et ε_{con} avec ϕ.

⇒ Comme pour la compression, les échantillons de PA et NiTi présentent un comportement proche de celui du caoutchouc (*cf.* figure 3.15(a)) : évolution non linéaire des courbes $\varepsilon_d - \varepsilon_a$, avec présence d'hystérésis et de faibles contraintes résiduelles à la décharge. De façon similaire, dans la plupart des situations,

les mêmes courbes pour le cuivre montrent une réponse élastoplastique. Il est aussi à noter que l'expansion élastoplastique est très prononcée à la décharge. Cette tendance, moins marquée pour les matériaux (super)élastiques tend à montrer que les réarrangements locaux causant l'expansion des échantillons sont différents en charge et en décharge.

⇒ Comme cela a déjà été discuté pour la figure 3.11, le comportement mécanique de l'échantillon de cuivre à $\phi = 0.40$ en traction est inédit. La figure 3.15(b) montre que pour des déformations axiales importantes, le comportement de l'échantillon qui semblait superélastique d'un point de vue mécanique ne l'est pas complètement : la courbe présente une déformation radiale résiduelle à la décharge. Cependant, cette même figure montre que lors d'une déformation axiale plus faible mais tout de même non négligeable ($\varepsilon_a = 0.07$), l'échantillon de cuivre au taux de fibres de 40% montre un comportement apparemment superélastique : ε_d et ε_a sont tous deux réversibles à la décharge.

III. Conclusions

Ce chapitre a eu pour but d'agrandir la base de données sur les milieux monofilamentaires à base de ressorts, en utilisant des matériaux présentant des comportements mécaniques différents. Nous avons pu montrer que la méthode développée et présentée au chapitre 2 pour fabriquer puis caractériser les enchevêtrements est adaptable à différents types de constituants de l'enchevêtrement. En utilisant ces méthodes de caractérisation optique développées dans le cadre de ce travail, il apparaît que la déformation mesurée par le déplacement des mors est une surestimation et prend en compte les effets de bord à la liaison avec les mors. Cette méthode permet aussi de faire une mesure de la déformation radiale et donc volumique au long de l'essai. La caractérisation mécanique d'enchevêtrements à base de fil de différents matériaux a montré la nécessité de développer des méthodes complémentaires.

Les données obtenues lors des essais mécaniques montrent que pour modifier les niveaux de contrainte de ces matériaux, deux solutions sont possibles : le choix d'une densité relative permet de modifier la réponse mécanique du milieu, en particulier pour des hautes densités, et le choix du matériau constitutif de la fibre permet lui aussi de modifier cette réponse. Cette dernière solution peut aussi être une possibilité de modifier le comportement global du matériau, comme le passage d'un milieu à base de fil de NiTi à un milieu de cuivre le montre. Il est à noter que la forme de la courbe ne varie pas ou peu (en traction comme en compression) que la fibre soit constituée d'un matériau élastique (PA) ou superélastique (NiTi).

L'analyse fine et quantitative de la déformation volumique a mis en avant un auxétisme déjà observé par Tan et collab. [98] en traction, mais non quantifié. L'analyse quantitative effectuée dans ce travail montre que l'auxétisme est plus prononcé pour des taux de fibres supérieurs à $\phi = 0.30$, et dans tous les cas précédé par une étape de contraction latérale des échantillons. Ce comportement est particulièrement visible

dans le cas de la traction sur le cuivre à $\phi = 0.40$ sur la figure 3.15(b). De même, la consolidation et la dilatance en compression ont été l'objet d'une attention particulière et montrent que ces matériaux ont des dilatances (réversibles pour les matériaux (super)élastiques) sans commune mesure avec ce qui a pu se mesurer jusqu'à présent (en particulier dans les milieux granulaires : quelques pourcents [16]). L'analyse de la déformation volumique a aussi pu nous renseigner sur l'apparition d'un mécanisme alternatif de déformation à haute densité relative en compression par bande de cisaillement. Finalement, l'apparition d'une superélasticité pour un milieu monofilamentaire à base de cuivre en traction montre de nouvelles pistes mésostructurales pour la fabrication de ces matériaux.

En l'état, les données obtenues dans ce chapitre sont très intéressantes, mais devraient être complétées par des essais sur les matériaux à base de PA et de NiTi dans des taux de fibres importants, voire confirmées (dans le cas de la "superélasticité apparente" des échantillons de cuivre à haut taux de fibre par exemple). Elles constituent cependant une bas de données originale sur ce genre de matériaux aux échelles macroscopiques. Pour pouvoir interpréter les résultats non communs observés sur ces matériaux, il est nécessaire de mettre en œuvre des analyses structurales et mécaniques à l'échelle du fil, c'est l'objet du chapitre suivant.

4

Comparaison Expériences–Simulations

Nous avons pu voir lors des précédents chapitres les propriétés macroscopiques de nos milieux monofilamentaires ainsi que l'influence du matériau constitutif de la fibre. Pour pouvoir accéder à l'évolution de la mésostructure lors d'un essai mécanique, deux solutions complémentaires sont envisagées : la simulation numérique par éléments discrets à l'échelle des fibres et la tomographie à rayons X avec essai mécanique in-situ permettent de suivre précisément la mésostructure au long de l'essai. Il faut cependant les associer pour permettre de tirer le meilleur parti de chacune : la tomographie in-situ permet de suivre un essai réel après des analyses de mésostructure dédiées, et la simulation qui permet un suivi plus précis mais qui nécessite une formulation pertinente de la mécanique du fil et de ses contacts. Nous allons maintenant mettre en œuvre et comparer les deux méthodes, pour vérifier que l'algorithme utilisé dans l'outil de simulation numérique reproduit de façon réaliste les déformations de l'échantillon déformé expérimentalement. Ceci pour mieux comprendre les comportements observés à l'échelle macroscopique.

Sommaire

I Procédures expérimentales 101
I.1 Matériau 101
I.2 Essai in situ 101
II Procédures numériques 104
II.1 Algorithme de calcul par éléments discrets 104
II.2 Génération des milieux fibreux 106
II.3 Simulation de l'essai 107
III Analyse des squelettes issues des mésostructures expérimentales et numériques 108
III.1 Orientation des fibres 109
III.2 Identification des contacts 109
III.3 Longueur de contacts 109

III.4 Orientation des contacts 109
III.5 Volume de l'échantillon 109
IV Résultats 110
IV.1 Évolutions macroscopiques 110
IV.2 Évolutions mésoscopiques 113
V Discussion 115
VI Conclusion 118

I. Procédures expérimentales

I.1. Matériau

L'échantillon analysé ici par micro-tomographie à rayons X est constitué d'un auto-enchevêtrement d'un fil de NiTi, tel que présenté dans le chapitre 2. Le fil est dans son état superélastique. Pour cet essai *in-situ*, l'échantillon présente une porosité moyenne de $\bar{\phi} = 0.30$, avec un fil de diamètre $500\mu m$, pour une hauteur initiale de 26.3 mm et un diamètre de 20 mm, il s'agit de l'échantillon présenté dans la figure 2.2 et 4.1 .

I.2. Essai in situ

Afin de compléter les données mécaniques globales du matériau, un essai interrompu avec observation 3D *in-situ* permettant de suivre les évolutions mésostructurales lors de la compression est mis en œuvre. Pour cela, un dispositif de compression avec une cellule de force de 7.5 kN a été installé dans le micro-tomographe du laboratoire 3SR (figure 4.1). À cette fin, les montants traditionnels de la presse sont remplacés par un tube de PMMA de diamètre intérieur 30 mm et d'épaisseur 7.5 mm. Ce tube permet d'assurer la transmission des rayons X, une homogénéité de l'image et de maintenir l'échantillon entre la source de rayons X et le détecteur. Ce dispositif, initialement destiné à faire des essais sur des géomatériaux (Viggiani et collab. [103]), comprend un vérin électromécanique permettant de solliciter l'échantillon à des vitesses allant de 1 à 100 $\mu m.min^{-1}$ et un capteur LVDT de course 20 mm. Le tout est monté sur la platine de rotation qui permet de modifier la distance entre l'objet et la source, la hauteur de la source est synchronisée avec celle de l'écran et permet ainsi de changer la hauteur de l'échantillon sur l'écran (*cf.* figure 4.1).

L'essai mécanique a consisté à soumettre l'échantillon à une charge-décharge jusqu'à une déformation globale de $\varepsilon_g = 0.3$ à une vitesse de compression de 5 $\mu.min^{-1}$ (*cf.* figure 4.2). À des déformations de 0, 0.1, 0.2 et 0.3, à la charge comme à la décharge, l'essai est interrompu. Une petite relaxation des contraintes de quelques pourcents est observée (*cf.* figure 4.2) en quelques minutes, après lesquelles le scan de l'échantillon est réalisé. Les tomographies de l'échantillon prises lors de l'essai de compression sont faites avec les mêmes paramètres expérimentaux que ceux présentés au chapitre 2 :

- ⇒ taille de voxel de 23^3 μm^3, de façon à disposer de tout l'échantillon dans le champ de vue, et pour que le diamètre de la fibre soit d'au moins 20 voxels pour faciliter la squelettisation du fil et la recherche des auto-contacts (*cf.* Latil [53])
- ⇒ moyenne sur 6 images
- ⇒ tension d'accélération fixée à 150 kV

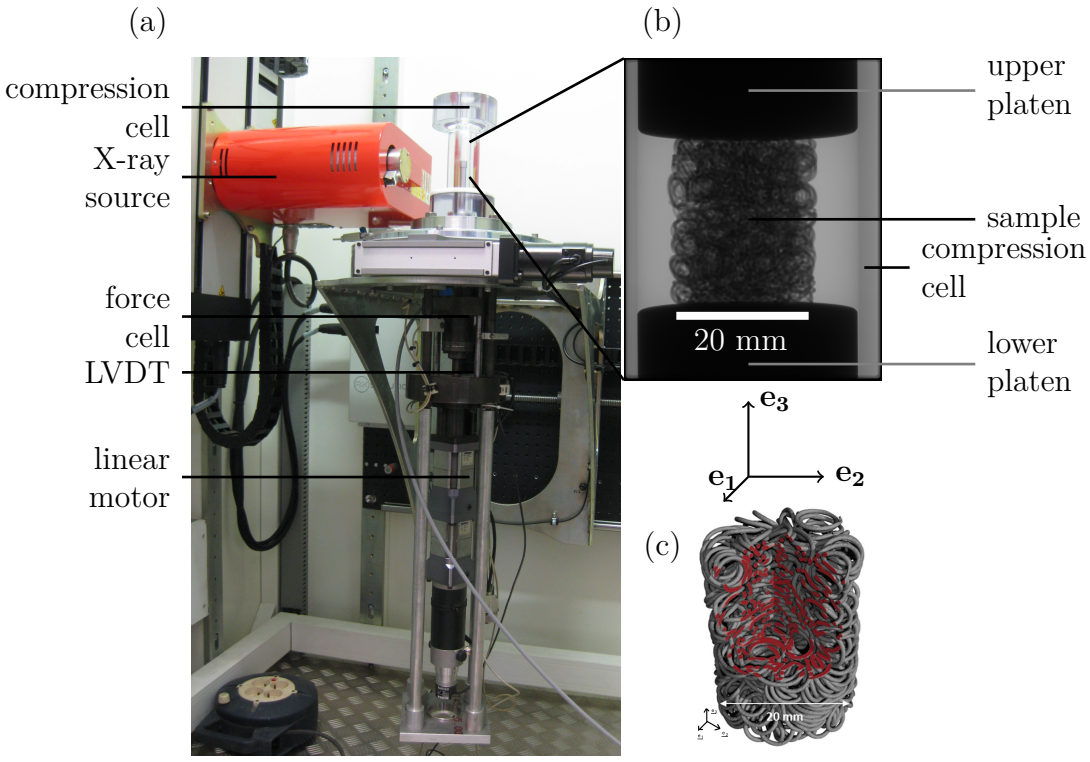


Figure 4.1 (a) Photographie de la presse in-situ et (b) radiographie d'un échantillon en NiTi obtenue dans ce montage. (c) Visualisation du volume reconstruit.

⇒ intensité électrique dans la source à 200 μA
⇒ filtre de cuivre de 1 mm placé à la sortie de la source pour prévenir le durcissement de faisceau ("beam hardening")
⇒ relaxation de l'échantillon pendant 2 à 5 minutes après l'application de chaque incrément de charge avant de réaliser le scan

À partir des données obtenues par le dispositif de compression (force et déplacement du LVDT en continu) et de celles des reconstructions de tomographie, la courbe de compression est recalée pour que la déformation axiale mesurée corresponde à celle observée localement dans l'échantillon. Pour cela, une procédure similaire à celle utilisée sur les images en deux dimensions lors des essais de compression est utilisée (cf. chapitre 2 et 3) : deux motifs distincts et communs à toutes les images 3D reconstruites sont repérés et suivis sur chacun des volumes 3D. Ils permettent de calculer la déformation axiale locale ε_a en les sept points de mesure du cycle de compression/relaxation (représentés par des cercles sur la figure 4.2). Pour estimer grossièrement le trajet de déformation entre les mesures locales faites sur les images, on utilise ensuite des transformations affines pour passer de la déformation globale donnée par le capteur LVDT de la presse (courbe en trait plein) à une déformation locale (courbe en pointillés) le long du cycle. Comme déjà observé dans

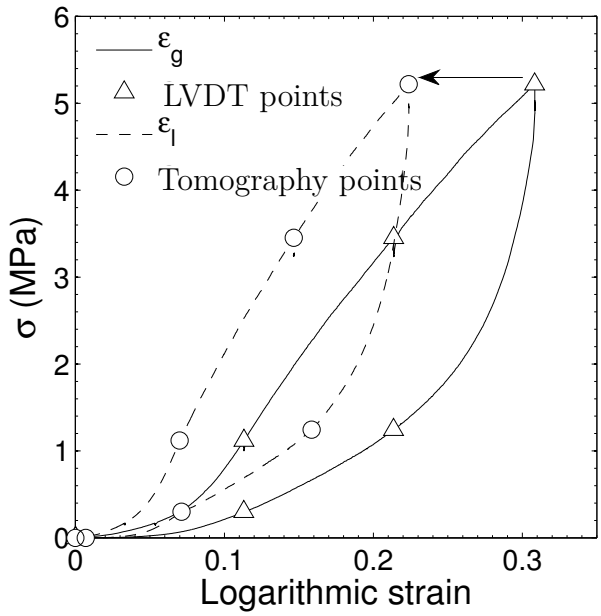


Figure 4.2 Recalage des courbes mécaniques entre déformation globale et locale.

le chapitre 2, on remarque (i) un comportement superélastique de l'échantillon comprimé, (ii) de fortes différences entre mesures locales et globales de la déformation axiale, essentiellement attribuée aux gradients de densité relatives observés sur les bords de l'échantillon (*cf.* figure 2.2(c)).

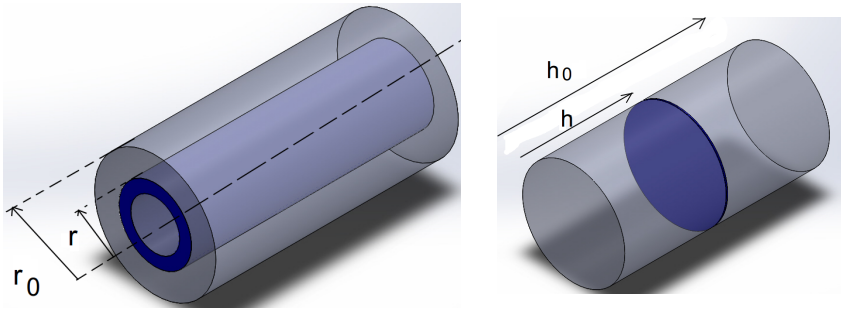


Figure 4.3 Description des coupes utilisées pour le calcul de la densité relative ϕ sur les tomographies : (a) radiale (b) axiale. Les zones sombres correspondent aux zones dans lesquelles la porosité est analysée.

La fraction volumique des fibres est obtenue dans deux directions (axialement et radialement) à partir des images de tomographie binarisées (cf. paragraphe ii)) : pour une analyse axiale (figure 4.3a du chapitre 1), chaque coupe d'épaisseur 23 μm est

limitée à un cercle contenant tout l'échantillon puis analysée, et la fraction volumique est calculée comme étant :

$$\phi = \frac{N_{noir}}{N_{total}} \tag{4.1}$$

où N_{noir} représente le nombre de pixels appartenant à la fibre et N_{total} le nombre total de pixels dans la partie de l'échantillon en cours d'analyse.

Pour accéder à la répartition radiale, les nombres de pixels noirs et totaux sont pris dans un tube d'épaisseur équivalente à 5 fois le diamètre d'une fibre, soit 2.5 mm, dont on fait varier le rayon entre 0 et le rayon du tube extérieur (figure 4.3b).

Du fait que cette approche est fondée sur les coupes en noir et blanc, il n'est pas possible de l'utiliser sur les échantillons virtuels sans recourir à la tomographie virtuelle [53] pour extraire les coupes du squelette du volume numérique.

Afin de pouvoir analyser l'évolution de la mésostructure de l'échantillon (tenseur d'orientation des fibres, nombre de contacts, orientation de leur normales, volume) lors de l'essai, la ligne moyenne de la structure est extraite des données segmentées selon la méthode proposée par Latil et collab. [54] (*cf.* figure 1.30), ce qui conduit à un squelette du fil qui a été analysé par les méthodes que nous avons utilisées au chapitre 2 (*cf.* sous-section II.2).

II.Procédures numériques

Pour simuler la déformation de l'échantillon imagé, nous avons utilisé le code de simulation numérique par éléments discrets développé et utilisé par Rodney et collab. [86] et [12] pour comprendre la mécanique en compression de milieux de fibres élastiques. Dans ce paragraphe, (i) nous présentons brièvement les principaux éléments du code, ainsi que (ii) le travail que nous avons mis en œuvre pour préparer/générer un échantillon numérique et (iii) le déformer en compression.

II.1.Algorithme de calcul par éléments discrets

La fibre est modélisée comme une poutre de Kirchhoff et discrétisée selon la méthode proposée par Bergou et collab. [13] (*cf.* paragraphe ii) du chapitre 1). Elle est donc divisée en segments $\mathbf{e_i}$ qui possèdent chacun leurs repères locaux permettant de calculer la courbure et la torsion de la fibre, comme cela a été indiqué dans l'équation 1.20 et représenté dans la figure 4.4 et la figure 1.26.

Dans le modèle de poutre utilisé, la fibre de module d'Young E_f et de diamètre d_f est considérée comme quasi-inextensible, sa raideur en traction est fixée par un ressort de raideur $K_{lin} = E_f \pi d_f^2/4$, ce qui permet d'écrire l'énergie de traction comme la somme des énergies sur chaque segment e_i ($\bar{e}_i$ à l'équilibre) :

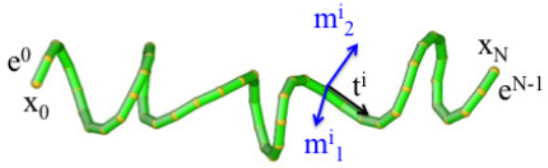


Figure 4.4 Discrétisation de la fibre pour une utilisation dans le code d'éléments discrets utilisé dans ce travail.

$$E_{lin} = \sum_{i=0}^{M-1} \frac{K_{lin}}{2} \left(1 - \frac{\|e_i\|}{\|\bar{e_i}\|}\right)^2 \|\bar{e_i}\| \tag{4.2}$$

Les simulations faites dans le cadre de ce travail ne prennent pas en compte la friction entre fibres, et les contacts entre fibres sont gérés suivant une loi de Hertz, dont le potentiel de répulsion est décrit par :

$$E_{rep} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} K_{contact} \left(1 - \frac{\delta_{i,j}}{d_f}\right)^{2.5} H(d_f - \delta_{i,j}) \tag{4.3}$$

où $\delta_{i,j}$ représente la distance entre les segments i et j, d_f le diamètre de la fibre, $K_{contact} = 8E_f d_f^3$ et H la fonction de Heaviside. De cette façon, le potentiel croît très rapidement lorsque les segments s'indentent ($\delta_{i,j} < d_f$), ce qui les maintient à $\delta_{i,j} = d_f$, *ie.* les fibres ne s'indentent pas à l'équilibre.

Dans le cas d'une fibre droite aux extrémités libres, l'énergie de torsion sera systématiquement nulle d'après les équations d'équilibre du modèle de Kirchhoff [53]. En revanche, pour le cas des milieux auto-enchevêtrés où la fibre a une courbure non nulle à l'équilibre, toute déformation implique à la fois une contribution de la courbure et de la torsion à l'énergie totale du système. Pour prendre en compte ces deux mécanismes, la minimisation d'énergie se fait en trois étapes :

⇒ minimisation de l'énergie de torsion $E_{twist} = \int \frac{K_{Twist}}{2} (m - \bar{m})^2 \, ds$

⇒ minimisation de l'énergie de flexion $E_{bending} = \int \frac{K_{Bending}}{2} \sum_{i=1,2} (\omega_i - \bar{\omega_i})^2 \, ds$

⇒ minimisation de l'énergie de torsion après modifications (éventuelles) par la flexion de la fibre et itération jusqu'à ce que la force maximum ressentie par les nœuds devienne inférieure à une valeur seuil F_{max}.

De cette manière, l'effet de la flexion sur la torsion et celui de la torsion sur la flexion sont pris en compte, tout en gardant un temps de calcul relativement court.

Afin de simplifier les calculs et de pouvoir adapter les résultats obtenus pour tout matériaux purement élastique, les valeur de forces sont adimensionnalisées par le module d'Young ainsi que le diamètre de la fibre au carré. Les forces obtenues en sortie doivent donc être multipliées par E_f pour avoir une dimension physique.

II.2.Génération des milieux fibreux

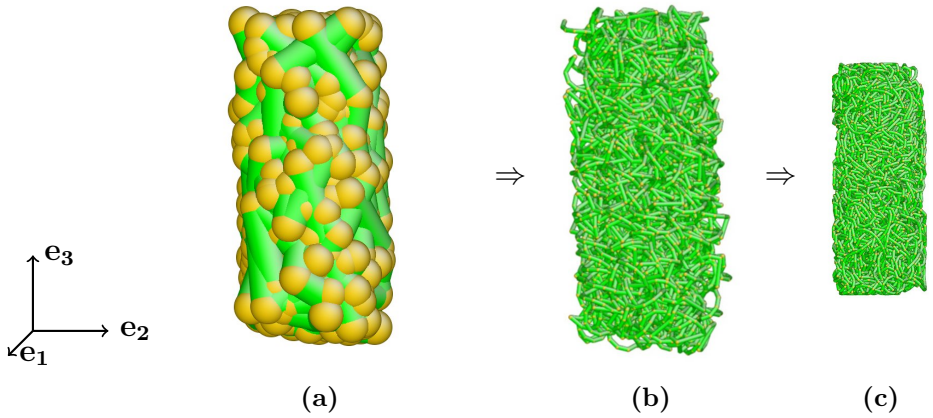


Figure 4.5 Procédé de production des échantillons virtuels : un tube de la dimension du ressort souhaité est tiré aléatoirement dans un cylindre (a) puis le ressort est construit dans ce tube (b) et le tout est comprimé et relaxé jusqu'aux dimensions voulues (c).

Afin de s'approcher au mieux des mésostructures des échantillons expérimentaux, une méthode de création d'échantillons numériques a été mise en place. Cette méthode repose sur une analogie avec la méthode physique, comme cela est illustré dans la figure 4.5. Pour cela, une structure tubulaire de monofilament ayant le diamètre du ressort final souhaité est déployée en tirant aléatoirement des segments liés en partant d'une position et d'une orientation aléatoires dans une matrice (figure 4.5a) dont le diamètre est au moins égal au diamètre final souhaité pour l'enchevêtrement. À chaque collision avec les parois de la matrice, ce "gros tube" est prolongé dans une nouvelle direction tirée aléatoirement. Ce procédé est répété jusqu'à ce que la longueur choisie du ressort final soit atteinte. Cette première mésostructure est ensuite modifiée de façon à construire le fil en hélice dans chacun des segments du tube (figure 4.5b). La dernière étape correspond à une série de compressions-relaxations radiales et axiales jusqu'à obtenir la densité et le rapport de forme souhaités (figure 4.5c).

Pour disposer d'un analogue avec les échantillons expérimentaux, les mésostructures sont construites avec les mêmes paramètres que les structures expérimentales : fil de 500 μm, ressort de 3 mm de diamètre puis compression dans une matrice de diamètre 20 mm jusqu'à obtenir une densité de 30% environ. Une fois relaxé, l'échantillon se présente comme montré à la figure 4.6 sous la forme d'un cylindre de 21 mm de hauteur et de 20 mm de diamètre dont la fibre est discrétisée en $M = 10\ 000$ nœuds. Nous avons vérifié que les descripteurs globaux des mésostructures des échantillons numériques et expérimentaux étaient quasiment identiques,

i.e. avec une même densité relative et les mêmes tenseurs d'orientation des segments de fibre et des normales aux contacts entre segments (*cf.* points initiaux dans la section III).

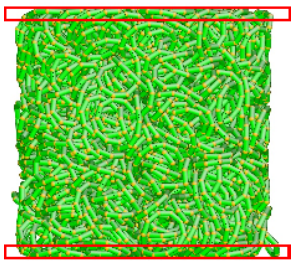


Figure 4.6 Visualisation de l'échantillon virtuel dans sa configuration initiale. Les rectangles rouges représentent les régions dont les nœuds sont bloqués verticalement pour appliquer les déformations de compression.

II.3.Simulation de l'essai

La mésostructure obtenue précédemment est définie comme étant celle d'équilibre et sert de point de référence pour les différents essais. Le déplacement lors des essais est imposé par blocage vertical des nœuds dans les régions supérieures et inférieures de l'échantillon sur une épaisseur équivalente à l'épaisseur de deux fibres (1 mm, cf. cadres rouges dans la figure 4.6), et par déplacement homothétique (*ie* les nœuds les plus éloignées (dans les zones bloquées) subissent la totalité du déplacement et la distance de déplacement diminue linéairement jusqu'à être nulle au centre de l'échantillon) de tous les nœuds entre les zones bloquées (pour ne pas créer de croisements de la fibre) puis relaxation. Cette méthode présente en outre la possibilité de faire de la traction en plus de la compression.

Les essais préliminaires ont montré que des incréments de déformation fins permettent une meilleur prise en compte des déplacements et des réarrangements.

Suite à ces essais préliminaires, plusieurs paramètres de simulation ont été définis :

$\Rightarrow$ incrément de déplacement des extrémités de l'échantillon : $\pm 0.1\ \mu m$

$\Rightarrow$ F_{max} à partir de laquelle un état est considéré comme relaxé : $5 \times 10^{-6} E_f d_f^2$

$\Rightarrow$ absence de frottement entre fibres

Cette faible taille de pas impose un très grand nombre d'itérations pour notre mésostructure : près de 49 000 pas pour une déformation imposée de $\varepsilon = 0.30$, soit 98 000 pour un cycle de charge-décharge. L'essai commence avec la mise à zéro de la torsion et de la flexion. L'échantillon est ensuite une première fois relaxé avant de subir un incrément de déformation, puis une relaxation. Cet enchaînement est réalisé jusqu'à ce que l'échantillon ait subi un cycle complet de déformation.

D'un point de vue du temps de calcul, la grande déformation totale imposée et les faibles incréments, plus des temps de relaxation pouvant être longs à cause de la

faible force limite F_{max} donnent des temps de calcul assez importants : pour un cycle culminant à une déformation totale de 30%, jusqu'à quatre mois ont été nécessaires (station de travail dédiée à deux processeurs Intel X5660 à 2.8 MHz, 24 Go de RAM).

Le code donne en fin de calculs une mésostructure (squelette) ainsi que les courbes macroscopiques de déformation et de force. La force macroscopique est mesurée en haut et en bas de l'échantillon en sommant pour chaque incrément de déformation la force verticale que les nœuds bloqués auraient subit à l'équilibre (et qui a été annulée (*cf.* figure 4.6)). Les deux régions de mesure donnent des valeurs égales de force à l'équilibre.

III. Analyse des squelettes issues des mésostructures expérimentales et numériques

À partir des squelettes obtenus par analyse d'images sur les tomographies ou lors des simulations, les analyses mésostructurales sont réalisées suivant les méthodes que nous allons détailler ici. La figure 4.7 explicite les notations utilisées dans la suite de cette partie.

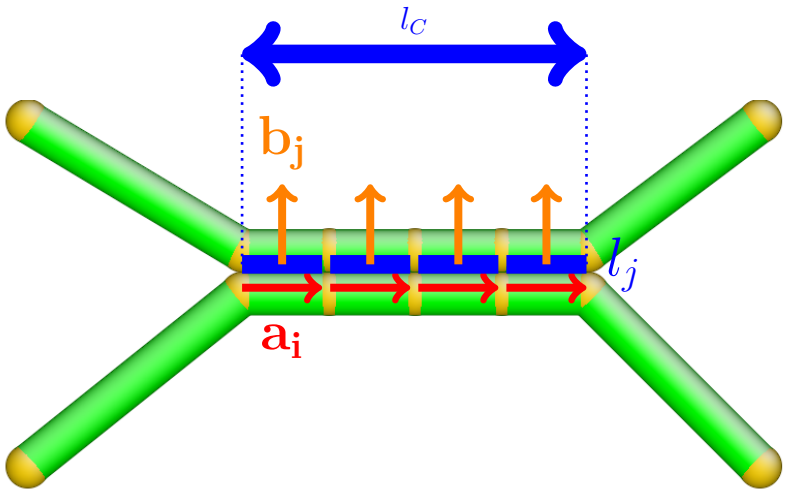


Figure 4.7 Illustration des notations utilisées dans les définitions des grandeurs mesurées à partir du squelette : $\mathbf{a_i}$ vecteur orientation du segment de la fibre, l_j longueur contact du contact élémentaire, $\mathbf{b_j}$ vecteur d'orientation de la normale au contact, l_C longueur totale du contact.

III.1.Orientation des fibres

L'orientation des fibres est calculée par à partir des squelettes issus des données de tomographie ou des simulations. Ce squelette est divisé en segments plus petits (0.5 mm pour les squelettes de simulation et 15 voxels soit 0.33 mm pour les images de tomographie) qui sont des valeurs donnant les résultats les plus proches de la réalité (*cf.* Latil [53]). Le vecteur d'orientation $\mathbf{a_i}$ de chaque segment i est utilisé pour évaluer le tenseur d'orientation des fibres $\mathbf{A}$ (*cf.* chapitre 2) :

$$\mathbf{A} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^{M} \mathbf{a_i} \otimes \mathbf{a_i} \tag{4.4}$$

III.2.Identification des contacts

En reprenant les segments précédemment définis, la distance entre chacun des couples excluant deux segments consécutifs est calculée, et deux segments dont la distance est comprise entre $1.0001 d_f$ et d_f sont considérés en contact. Si deux segments consécutifs sont en contact avec deux autres segments consécutifs, ils ne sont considérés que comme un contact unique.

III.3.Longueur de contacts

L'estimation de la longueur totale de contact entre les fibres est faite selon l'expression suivante :

$$l_c = \sum_{<i,j>} \frac{l_i + l_j}{2} * |cos(\theta_{ij})| \tag{4.5}$$

où θ_{ij} représente l'angle entre les deux vecteurs directeurs des segments i et j et l_i et l_j leurs longueurs.

III.4.Orientation des contacts

Les contacts identifiés précédemment sont orientés en utilisant leurs normales $\mathbf{b_j}$. Les éléments principaux de leur tenseur moyen sont calculés de la façon suivante :

$$\mathbf{B} = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} \mathbf{b_j} \otimes \mathbf{b_j} \tag{4.6}$$

III.5.Volume de l'échantillon

Pour pouvoir mesurer la déformation volumique ε_v, le volume de l'échantillon est mesuré en s'appuyant sur le squelette : l'échantillon est d'abord découpé en 250

tranches sur la hauteur comme montré sur la figure 4.8 et sur chacune de ces tranches, les centres des fibres dans la tranche k d'épaisseur h_k sont alors inscrits dans un polygone d'aire $\mathcal{A}_k$. Le volume de l'échantillon est alors calculé comme étant :

$$V = \sum_k \mathcal{A}_k * h_k \tag{4.7}$$

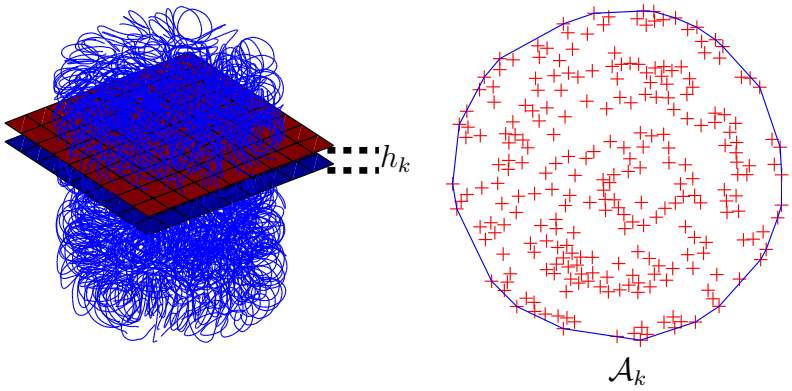


Figure 4.8 Procédé de mesure du volume des échantillons pour la déformation volumique : définition des éléments géométriques utilisés dans la détermination du volume.

IV.Résultats

IV.1.Évolutions macroscopiques

La contrainte issue de la simulation est convertie en unités physiques ($\sigma_{exp} = \sigma_{simu} \times E_f$) puis comparée à celle obtenue lors de la compression *in-situ* sur la figure 4.9a après recalage (figure 4.2) pour la mesure de déformation sous tomographie. Cette comparaison montre une bonne adéquation semi-quantitative entre les deux types d'essais compte tenu du fait que les échantillons expérimentaux et numériques n'ont pas exactement les mêmes mésostructures (hauteur, échantillon différent) : les deux courbes présentent une forme en "J" très similaire lors de la charge, avec des niveaux de contrainte semblables et un changement de pente marqué en début de compression. En revanche, l'amplitude de l'hystérésis est beaucoup moins marquée pour la simulation que pour l'expérience, ce qui peut provenir de l'absence de frottement inter-fibres et de l'absence d'hystérésis dans la loi de comportement choisie pour le fil dans les simulations : les seules sources d'instabilité mises en jeu lors de la simulation sont les nombreux réarrangements locaux du fil au cours de l'essai.

Dans les deux cas, la charge se décompose en deux parties : une première partie courant sur une faible déformation avec une faible raideur suivie par une deuxième

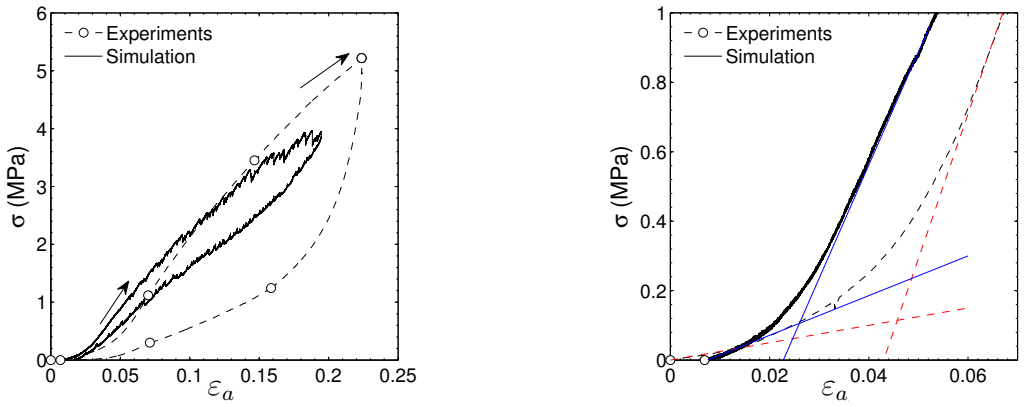


Figure 4.9 (a)Comparaison de la réponse mécanique lors des essais de compression expérimentaux et numériques (b) Agrandissement de la première partie de la courbe mécanique en charge et traits de construction pour les déformations aux changements de pente.

partie plus longue avec une raideur plus importante. Les changements de pente montrés dans le zoom sur la figure 4.9b sont situés à $\varepsilon = 0.026$ et $\varepsilon = 0.045$ pour la simulation et l'expérience respectivement.

Les formes des échantillons au cours des essais numérique et expérimental sont données dans la figure 4.11(a) et (b) et tendent à montrer que les déformations se produisent de façon homogène d'un point de vue macroscopique tant dans le cas de la simulation que dans le cas de l'essai expérimental : les échantillons conservent leur forme globalement cylindrique et ne présentent pas de localisation des déformations comme le font d'autres échantillons de mésostructure semblable (cf figure 1.20, d'après He et collab. [44]). L'utilisation de champs de déplacement (par rapport à la configuration initiale) selon $\mathbf{e_{33}}$ en couleur (figure 4.11(b) et (c)) obtenus dans le cas de la simulation montre qu'à une échelle inférieure, des sauts de couleur significatifs de réarrangements localisés typiques des milieux discrets, mais sans les bandes de cisaillement (Bolton [16]).

Nous avons ensuite analysé la déformation volumique des échantillons en cours de cycle de compression en utilisant le méthode décrite à la sous-section III.5 de ce chapitre. Les résultats sont montrés à la figure 4.12. Bien que les déformations volumiques soient très semblables dans la forme pour la simulation et l'expérience *in-situ*, deux points les différencient : d'une part la simulation donne une déformation volumique maximale de 17% environ, alors la tomographie ne donne que 7% maximum et d'autre part l'hystérésis présentée par les deux cycles est différente, avec une largeur d'hystérèse pour la mesure expérimentale plus importante que la valeur obtenue numériquement. Toutefois, dans les deux cas, les milieux monofilamentaires

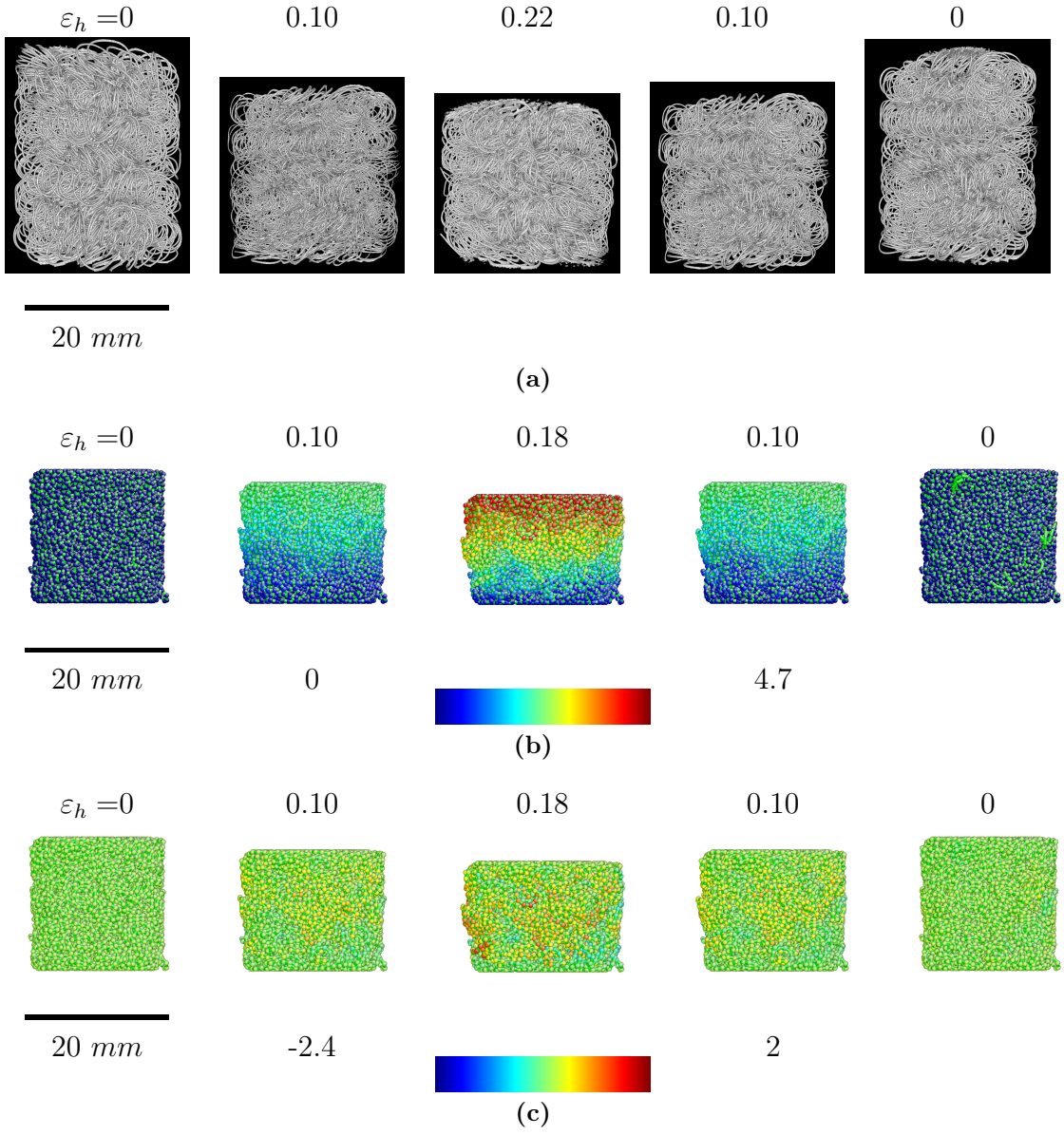


Figure 4.11 Évolution de la déformation des échantillons au cours d'un essai de charge-décharge en compression (a) *in-situ* et (b) en simulation (cf figure 4.9).
(b) La couleur des nœuds de la simulation correspond à l'amplitude de leur déplacement axial par rapport à la configuration initiale, le bleu correspondant à un déplacement nul et le rouge à un déplacement de 4.7 mm dans la figure et (c) la même échelle est appliquée en soustrayant le déplacement affine des nœuds entre le haut et le bas de la structure.

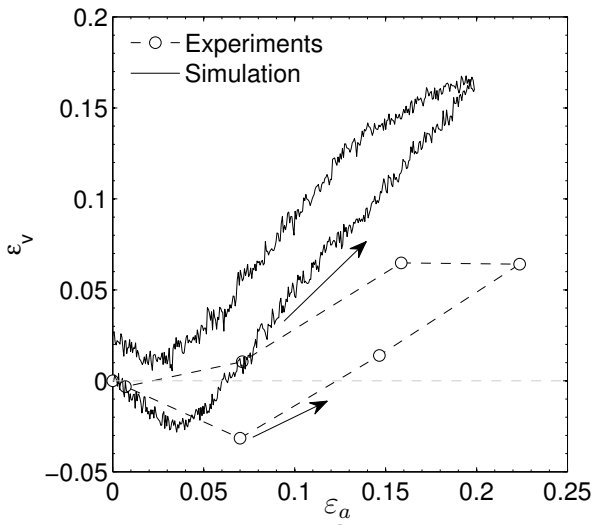


Figure 4.12 Déformation volumique ε_v des échantillons numériques et expérimentaux en fonction de la déformation axiale ε_a au cours de l'essai de compression.

montrent en début de charge une consolidation de l'ordre de 3% pendant laquelle le volume des échantillons diminue, suivie par une importante dilatance de l'ordre de 10 à 20%. Ces variations se retrouvent de façon qualitative sur les essais *ex-situ*, tels que sur la figure 3.8. Les différences quantitatives peuvent au moins en partie être liées à la différence de densité relative entre les deux échantillons ($\phi = 0.36$ pour la figure 3.8 et $\phi = 0.30$ pour les deux échantillons regardés ici). Il est aussi à noter que le cycle numérique finit avec une déformation volumique non nulle, contrairement à la mesure expérimentale.

IV.2. Évolutions mésoscopiques

Comme nous l'avions fait dans le chapitre 2, la tomographie permet également de suivre le profil de densité axiale de l'échantillon. Les résultats expérimentaux sont regroupés dans la figure 4.13. Les résultats présentés ont été mesurés sur les configurations initiales, au maximum de compression et après décharge et montrent que lors de la compression, les profils de densité relative expérimentale restent homogènes dans la hauteur de l'enchevêtrement. Comme la déformation volumique le montrait déjà, à cause de l'effet dilatant, la densité moyenne diminue lors de la compression puis augmente lors du retour. Ces courbes montrent aussi que les profils ne varient que peu au cours de l'essai, ce qui pointe comme les déformées de la figure 4.11 vers un mécanisme de déformation macroscopique homogène, à l'inverse de la déformation par bandes de cisaillement qui apparaît dans le cuivre à haute densité (*cf.* figure 3.14).

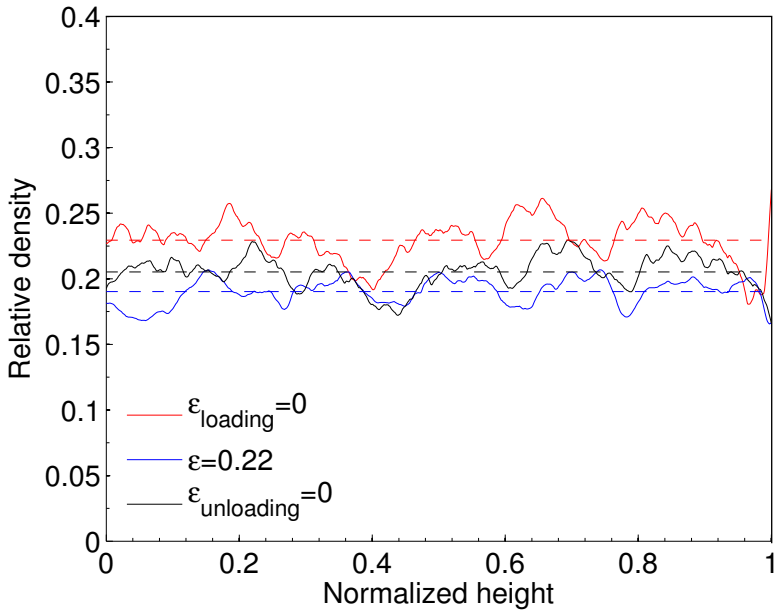
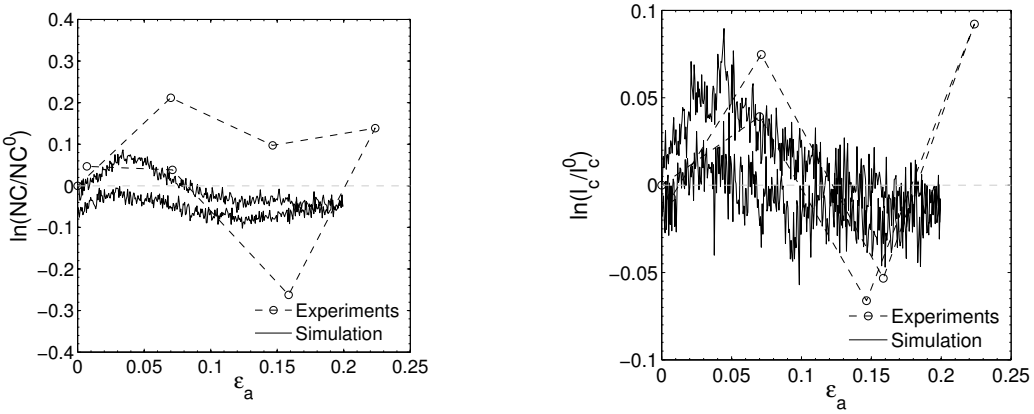


Figure 4.13 Évolution du profil axial de densité de l'échantillon expérimental sur trois points : $\varepsilon = 0$ et 0.22 en chargement et $\varepsilon = 0$ à la décharge.



(a) **(b)**

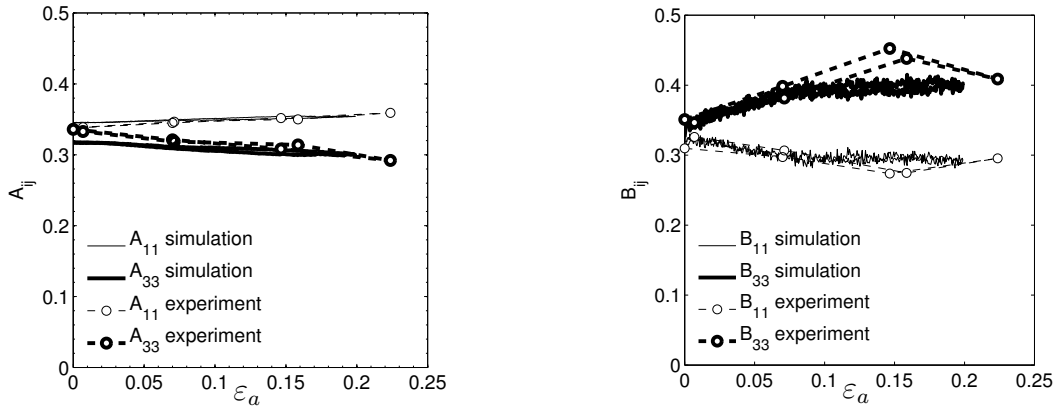
Figure 4.14 Analyse des mésostructures : variation du nombre de contacts $ln(N_c/N_c^0)$ et de leur longueur totale $ln(l_c/l_c^0)$ lors d'essai *in-situ* et de simulation.

L'analyse des mésostructures et plus particulièrement le nombre et la longueur des contacts (figure 4.14), montre un accord qualitatif entre les deux séries de données : les deux courbes de la figure 4.14(a) montrent lors de la charge une augmentation suivie d'une diminution du nombre de contacts. Dans le cas de la simulation, le nombre de contacts se stabilise proche du nombre de contacts initial, alors que dans

le cas de l'expérience, cette dernière partie est absente. La décharge en simulation suit un comportement inverse de celui de la charge avec un premier pallier suivi par une augmentation puis une diminution du nombre de contacts. L'expérience montre de son côté une importante baisse du nombre de contacts sur un point suivi par une croissance pour finir en fin de décharge à un nombre de contacts supérieur à celui de départ.

Cette analyse est complétée par le tenseur d'orientation des normales aux contacts **B** (figure 4.15b) qui évolue de manière cohérente : lors de la compression, dans les deux cas, les normales aux contacts s'orientent de manière importante et de façon à ce que les contacts transmettent l'effort verticalement. Ceci se traduit par une composante selon $\mathbf{e_3}$ plus importante que les autres. Les évolutions sont similaires pour les essais mécaniques et les simulations.

La mésostructure a aussi été étudiée en analysant l'orientation des fibres au long des essais expérimentaux et numériques, avec un repère tel que $\mathbf{e_3}$ soit sur l'axe des échantillons vers le haut (figure 4.1). Il apparaît que dans les deux cas, la mésostructure initiale est isotrope, comme le montrent les éléments $\mathbf{A_{11}}$ et $\mathbf{A_{33}}$ (figure figure 4.15a) du tenseur d'orientation de la fibre qui sont très proches de 0.33. Les composantes selon le vecteur $\mathbf{e_1}$ augmentent légèrement, ce qui implique que les fibres ont tendance à s'aplatir, pour être perpendiculaires à l'axe de compression, cet alignement étant limité.



(a) **(b)**

Figure 4.15 Composantes selon $\mathbf{e_1}$ et $\mathbf{e_3}$ du tenseur (a) d'orientation des fibres et (b) des normales aux contacts pour les tomographies et la simulation.

V. Discussion

La courbe mécanique de la simulation (figure 4.9a) montre des serrations importantes tout au long du cycle, alors que celle de l'essai expérimental n'en montre pas.

Les deux courbes disposant d'un nombre de points suffisamment important pour que cela ne soit pas un effet de lissage par sous-échantillonnage, ces différences de réponse peuvent être expliquées par le fait que la simulation utilise un algorithme quasistatique qui impose d'aller jusqu'à l'instabilité pour avoir un réarrangement, alors que du côté expérimental, l'essai est à température et vitesse de déformation finies et est donc est soumis à des effets (thermique et mécanique) dynamiques qui lissent la courbe de contrainte à l'échelle macroscopique.

Comme nous avons pu le voir sur la figure 4.9a (sous-section IV.1), les comportements mécaniques de la simulation et de l'expérience montrent un accord qualitatif malgré l'absence de frottement et une loi de comportement élastique pour la simulation. Le comportement observé ici est donc bien une propriété de l'architecture monofilamentaire désordonnée. Ceci est cohérent avec les résultats du chapitre 3 où des comportements similaires avaient été obtenus avec des fils (visco)élastiques, superélastiques et ductiles.

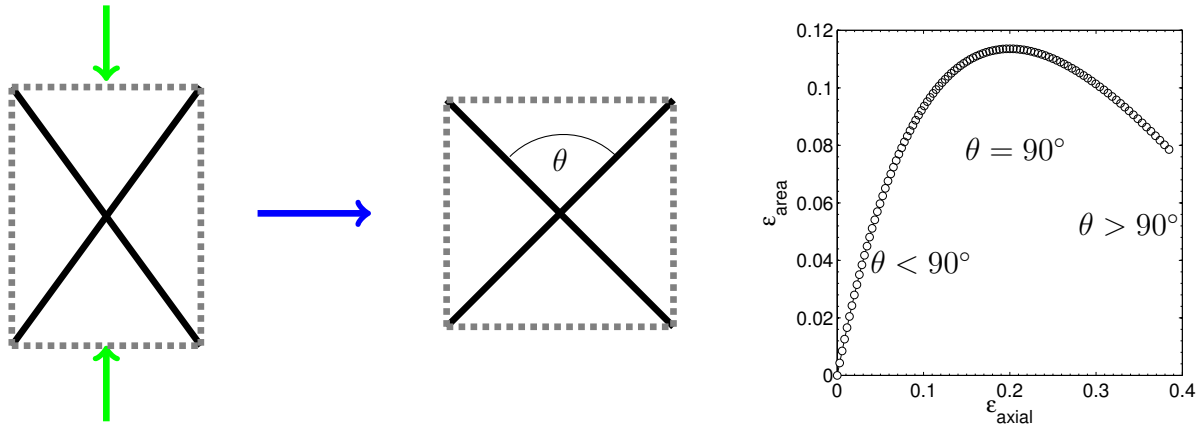
Il est aussi à noter que dans la simulation comme dans l'expérience, la déformation est proche de la réversibilité, contrairement à d'autres matériaux fibreux qui ont pu être testés jusqu'à présent, notamment les milieux de fibres non cohésifs qui subissent une forte réorganisation irréversible lors du premier cycle (cf. figure 1.5, [79]).

Tout comme la contrainte mécanique, la déformation volumique de la figure 4.12 montre un comportement proche de la réversibilité après une importante dilatance, comme cela avait été noté au chapitre 3. Cette dilatance est précédée d'une consolidation, attendue dans le cas de milieux fibreux, et dont le maximum correspond au changement de pente de la courbe mécanique observé précédemment. Cette transition correspond aussi au maximum du nombre de contacts dans la figure 4.14. La consolidation est donc une phase de réarrangements faciles, qui s'opèrent sous faible contrainte appliquée et permet la création de nombreux contacts qui finissent par renforcer le milieu. Dans le cas des milieux fibreux, la consolidation correspond aussi à une forte réorientation des fibres jusqu'à atteindre un réseau où les points de contact se bloquent. Dans ce régime, la variation de diamètre induit une augmentation de volume inférieure à celle issue de la déformation axiale.

La dilatance qui intervient ici après la phase de consolidation est un phénomène connu dans le cas des milieux discrets granulaires, mais dans des proportions moins importantes et correspond à un coefficient de Poisson tangent supérieur à 0.5, alors que dans les matériaux traditionnels, cette fonction de Poisson est en deçà de cette valeur (0.33 pour les métaux, par exemple). Dans les milieux granulaires (comme les sables), la dilatance est souvent limitée à 1 à 2% [16], alors qu'ici, comme le montre la figure 4.12, des déformations volumiques de 6% expérimentalement (10 à 20% au chapitre 3) et 17% en simulation sont atteintes. Dans les milieux granulaires, cette variation est attribuée au réarrangement non réversible des particules par effets stériques. Dans notre cas, les réarrangements sont probablement exacerbés par le réarrangement des mésostructures initialement courbées au cours de la compression. En effet, l'absence de frottements dans la simulation numérique va permettre des réar-

rangements plus facilement que pour les expériences où les frottements sont présents et limitent ainsi les mouvements macroscopiques radiaux. De même, la consolidation moins marquée pour la simulation pourrait être liée à cette absence de frottement qui permet à la fibre de commencer à se réarranger pour des contraintes plus faibles qu'expérimentalement.

Dans notre cas, le comportement dilatant est très important et proche de réversible. Il peut être lié directement à la structure de l'échantillon qui peut s'apparenter à un ensemble de tiges ou tubes représentant les ressorts, liés par leur centre comme dans le modèle dit du "wine-rack" (cf. figure 4.16). Dans ce modèle, une faible déformation axiale va entraîner une importante déformation latérale de la structure. Ainsi, le volume total de la structure va augmenter tant que l'angle θ entre les fibres sera inférieur à 90°. Cette description phénoménologique en deux dimensions est facilement transposable à une structure en trois dimensions.



(a) **(b)**

Figure 4.16 (a) Définition du modèle de type "wine-rack" : les barres représentent des segments de ressorts du milieu monofilamentaire. (b) Déformation surfacique évoluant au cours de la compression du "wine-rack".

Le milieu monofilamentaire que nous avons proposé est donc un système à part, à mi-chemin entre un milieu (hyper)élastique traditionnel et un milieu granulaire ou fibreux non cohésif. En effet, ce milieu présente une déformation macroscopique quasi-réversible, même après des transformation finies comme un milieu (hyper)élastique traditionnel, mais avec de l'hystérésis, une consolidation et surtout une dilatance importante en cours de déformation comme un milieu discret granulaire ou fibreux non cohésif. Nos milieux présentent ainsi un comportement original de "dilatance réversible" que l'on ne rencontre pas dans les milieux discrets traditionnels où la dilatance est un phénomène irréversible. Cette "dilatance réversible" provient d'un côté du fait que le système est discret car constitué d'une fibre et que les frottements de ses contacts sont faibles, ce qui permet des réarrangements importants sous l'effet

de la contrainte appliquée. D'un autre côté, le fait qu'une unique fibre soit utilisée implique l'apparition en cours de déformation d'une contrainte de cohérence dans l'ensemble de la fibre qui est suffisamment forte pour permettre un retour quasi-élastique lors de la décharge. Nous avons ainsi mis au point un milieu original, capable de changer de forme pour s'adapter à une déformation imposée, mais aussi de revenir à sa forme initiale (ou proche de celle-ci) lors du retrait de la charge appliquée.

L'orientation des fibres (figure 4.15a) montre une structure initialement isotrope, avec une évolution semblable pour la simulation et pour l'expérience : dans les deux cas la structure devient isotrope transverse le long de l'axe de compression. Cette évolution a pour conséquence de permettre à la fonction de Poisson calculée d'après l'équation 4.8 de dépasser 1, comme cela est visible sur la figure 4.17.

$$\nu = \frac{1}{2}\left(1 - \frac{d\varepsilon_v}{d\varepsilon}\right) \tag{4.8}$$

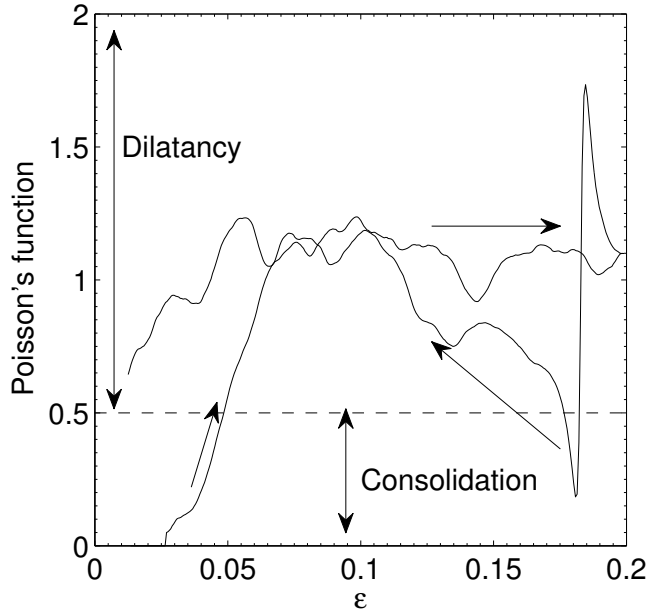


Figure 4.17 Fonction de Poisson en fonction de la déformation au cours de l'essai de simulation.

VI. Conclusion

L'analyse des mésostructures des échantillons au cours d'essais expérimentaux et numériques montre une corrélation entre la mécanique, la déformation volumique et le nombre de contacts.

Bien que la tomographie donne une information locale sur la mésostructure réelle,

elle ne nous a pas permis de faire des essais continus. La bonne corrélation entre la simulation et la tomographie nous a permis de montrer que le comportement du matériau est proche de celui obtenu expérimentalement, les variations pouvant être attribuées aux lois de comportement de la fibre unitaire dans la simulation (élasticité et absence de frottement).

D'autre part, la fonction de Poisson montre un comportement non observé jusqu'à présent avec une consolidation conforme au comportement des matériaux fibreux, mais une dilatance réversible et de très forte importance. Cette dilatance est aussi réversible, ce que les milieux granulaires ne montrent pas. Cette propriété mécanique originale provient du caractère à la fois discret et continu de notre système : discret car constitué d'une fibre, mais aussi continu car elle est unique. Une contrainte de cohérence importante se développe dans l'ensemble de l'échantillon lors de la déformation. La tomographie a aussi permis de confirmer que le suivi par analyse d'images du volume de l'échantillon réalisé au chapitre 3 permet de disposer de données volumétriques représentatives de la déformation mesurée en trois dimensions, comme nous l'avons fait dans ce chapitre.

Conclusions et perspectives

Ce travail de thèse nous a emmenés de la fabrication à la caractérisation des milieux fibreux, en passant par une prédiction de leurs propriétés par simulation. Comme mentionné dans l'Introduction, nous souhaitions développé un matériau poreux biocompatible ayant de bonnes propriétés mécaniques. Nous avons opté pour un milieu fibreux auto-enchevêtré constitué d'une fibre unique. Pour cela, nous avons adapté et optimisé au cas d'un fil de NiTi un procédé de mise en forme fondé sur l'auto-enchevêtrement d'un ressort.

Dans le chapitre 2, nous avons montré que nous pouvions mettre en forme des milieux à partir de traitements thermiques à des températures suffisamment basses pour éviter toute oxydation et offrir un meilleur contrôle des propriétés thermomécaniques du fil. Les mésostructures obtenues sont homogènes, isotropes et nous avons montré qu'il était possible d'en contrôler certains paramètres tels que la densité relative, la granulométrie des pores et l'anisotropie. De plus, dépendant des traitements thermomécaniques, ces mésostructures peuvent présenter soit un comportement superélastique marqué jusqu'à au moins 30% de déformation, soit un comportement à mémoire de forme avec là aussi des déformations recouvrables très importantes (au moins 16%). Nous avons montré que les propriétés mécaniques de ces structures sont d'une part compatibles avec le cahier des charges pour des implants osseux et d'autre part permettent d'envisager l'utilisation de ces milieux comme système d'amortissement.

Dans le chapitre 3, nous avons montré que les milieux auto-enchevêtrés sont des exemples typiques de structures architecturées dont les propriétés mécaniques dépendent essentiellement de l'arrangement interne de la fibre et moins de ses caractéristiques mécaniques. En effet, les milieux constitués d'une fibre de polyamide, de cuivre ou de NiTi présentent tous en compression un comportement consolidant puis dilatant. Nous avons aussi remarqué une forte dissymétrie entre traction et compression. Enfin, nous avons montré que les structures pouvaient présenter un comporte-

ment auxétique en traction. La seule différence notable que nous avons observée est la plastification des structures de cuivre liée à la forte ductilité du fil métallique.

Dans le dernier chapitre, nous avons cherché à affiner notre compréhension des mécanismes élémentaires de déformation en compression en comparant un essai mécanique réalisé sous tomographe avec des simulations par éléments discrets. Nous avons montré un accord quantitatif entre les 2 approches malgré les hypothèses fortes utilisées dans la simulation : génération de l'enchevêtrement, comportement élastique linéaire du fil, absence de frottement aux contacts. Dans ce cadre, nous avons montré que la simulation permettait de reproduire l'évolution des efforts macroscopiques (comportement superélastique avec hystérésis), du volume (consolidation puis dilatance quasi-réversible), du nombre, de la longueur et de l'orientation des contacts, ainsi que de l'anisotropie de la mésostructure. Ce travail confirme que les propriétés des enchevêtrements ne dépendent pas de la nature du fil tant que celui-ci est (super)élastique et que les frottements jouent un rôle très limité.

Le comportement mécanique des milieux auto-enchevêtré est donc original, à mi-chemin entre celui de solides élastiques et celui de milieux granulaires. En particulier, le fait que ces milieux présentent une dilatance réversible est une propriété unique liée au caractère de la mésostructure à la fois discret (milieu de fibres non liées) et continu (constitué d'une unique fibre). En ajoutant qu'en traction, ces milieux peuvent présenter un comportement auxétique, nous avons montré ici qu'en utilisant une architecture spécifique, nous pouvions faire émerger des comportements mécaniques originaux difficiles à obtenir avec des matériaux massifs ou des milieux poreux plus traditionnels.

Ce travail ouvre des voies pour la mise en œuvre des alliages à mémoire de forme poreux, et leur éventuelle utilisation dans des dispositifs biomédicaux. Pour cela, un certain nombre de tâches sont encore à accomplir :

- ⇒ adaptation de la technique de mise en forme pour des formes plus complexes et de plus grand volume que nos cylindres et leur traitement thermique optimal.
- ⇒ contrôle de la durabilité du matériau, en particulier sous sollicitation cyclique, ainsi que pour les interactions avec les milieux biologiques.
- ⇒ estimation des effets de bord, par exemple en comparant nos essais avec des essais sur échantillons de grand diamètre, ou des simulations sur un milieu périodique.
- ⇒ optimisation fine du module d'Young et de la mésostructure (taille de pores) pour améliorer la biocompatibilité.

Bibliographie

[1] Advani, S. et C. Tucker. 1987, «The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites», Journal of Rheology, vol. 3, p. 751–784.

[2] Ando, E., G. Viggiani, S. A. Hall et J. Desrues. 2013, «Experimental micro-mechanics of granular media studied by X-ray tomography : recent results and challenges», Geotechnique Letters, vol. 3, p. 142–146.

[3] Ashby, M. 2013, «Designing architectured materials», Scripta Materialia, vol. 68, p. 4–7.

[4] Aydogmus, T. et S. Bor. 2009, «Processing of porous TiNi alloys using magnesium as space holder», Journal of Alloys and Compounds, vol. 478, p. 705–710.

[5] Aydogmus, T. et S. Bor. 2012, «Superelasticity and compression behavior of porous TiNi alloys produced using Mg spacers», Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials, vol. 15, p. 59 – 69.

[6] Aydogmus, T., T. Bor et S. Bor. 2011, «Phase transformation behavior of porous TiNi alloys produced by powder metallurgy using magnesium as a space holder», Metallurgical and Materials Transactions A, vol. 42A, p. 2547–2555.

[7] Badel, E., C. Delisee et J. Lux. 2008, «3D structural characterisation, deformation measurements and assessment of low-density wood fibreboard under compression : The use of X-ray microtomography», Composites Science and Technology, vol. 68, n° 7-8, p. 1654 – 1663.

[8] Balberg, I., C. H. Anderson, S. Alexander et N. Wagner. 1984, «Excluded volume and its relation to the onset of percolation», Physical Review B, vol. 30, p. 3933–3943.

[9] Balberg, I., N. Binenbaum et N.Wagner. 1984, «Percolation thresholds in the three-dimensional sticks system», Physical Review Letters, vol. 52, n° 17, p. 1465–1468.

[10] Bansiddhi, A., T. Sargeant, S. Stupp et D. Dunand. 2008, «Porous NiTi for bone implants : A review», Acta Biomaterialia, vol. 4, n° 4, p. 773 – 782.

[11] Barbier, C., R. Dendievel et D. Rodney. 2009, «Numerical study of 3D-compressions of entangled materials», Computational Materials Science, vol. 45, p. 593–596.

[12] Barbier, C., R. Dendievel et D. Rodney. 2009, «Role of friction in the mecanics of nonbonded fibrous materials», Physical Review E, vol. 80, p. 1–5.

[13] Bergou, M., M. Wardetzky, S. Robinson, B. Audoly et E. Grinspun. 2008, «Discrete Elastic Rods», ACM Transactions on Graphics (SIGGRAPH), vol. 27, n° 3, p. 63 :1–63 :12.

[14] Bertheville, B. 2006, «Porous single-phase NiTi processed under Ca reducing vapor for use as a bone graft substitute», Biomaterials, vol. 27, p. 1246–1250.

[15] Biswas, A. 2005, «Porous NiTi by thermal explosion mode of SHS : processing, mechanism and generation of single phase microstructure», Acta Materialia, vol. 53, p. 1415–1425.

[16] Bolton, M. 1986, «The strength and dilatancy of sands», Géotechnique, vol. 36, n° 1, p. 65–78.

[17] Bréchet, Y. et J. Embury. 2013, «Architectured materials : Expanding materials space», Scripta Materialia, vol. 68, p. 1–3.

[18] CES Selector. 2013, Granta Design Ltd, Cambridge, UK.

[19] Chalencon, F., L. Orgéas, P. Dumont, G. Foray, J. Cavaillé, E. Maire et S. Rolland du Roscoat. 2010, «Lubricated compression and X-ray microtomography to analyse the rheology of a fibre-reinforced mortar», Rheologica Acta, vol. 49, p. 765–777.

[20] Chen, W.-H., F.-C. Lee et D.-M. Chiang. 2000, «On the acoustic absorption of porous materials with different surface shapes and perforated plates», Journal of Sound and Vibration, vol. 237, p. 337–355.

[21] Chuprina, V. G. et I. M. Shalya. 2002, «Reactions of TiNi with oxygen», Powder Metallurgy and Metal Ceramics, vol. 41, p. 85–89.

[22] Cornelissen, B. 2012, The role of friction in tow Mechanics, thèse de doctorat, Université de Twente, Pays Bas.

[23] Cory, J. et J. J. McNichols. 1985, «Nonequilibrium thermostatics», Journal of Applied Physics, vol. 58, p. 3282–3294.

[24] Courtois, L. 2012, Monofilament entangled materials : relationship between microstructural properties and macroscopic behaviour, thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France.

[25] Courtois, L., E. Maire, M. Perez, D. Rodney, O. Bouaziz et Y. Brechet. 2012, «Mechanical properties of monofilament entangled materials», Advanced engineering materials, vol. 14, p. 1128–1133.

[26] Delobelle, V., P. Delobelle, Y. Liu, D. Favier et H. Louche. 2013, «Resistance welding of NiTi shape memory alloy tubes», Journal of Materials Processing Technology, vol. 213, n° 7, p. 1139–1145.

[27] Doi, M. et S. F. Edwards. 1978, «Dynamics of rod-like macromolecules in concentrated solution. Part 1», Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2, vol. 74, p. 560–570.

[28] Duerig, T. et A. Pelton. 1993, Materials Properties Handbook Titanium Alloys, chap. TiNi shape memory alloy, Gerhard Welsch, Rodney Boyer, E. W. Collings, p. 1035–1048.

[29] Durville, D. 2005, «Numerical simulation of entangled materials mechanical properties», Journal of Materials Science, vol. 40, n° 22, p. 5941–5948. EUROMECH Colloquium 459, Inst Natl Polytechn Lorraine, Nancy, FRANCE, JUN 07-10, 2004.

[30] Durville, D. 2007, «Une approche pour la simulation numérique des milieux enchevêtrés et des structures tissées», dans 18 ème Congrès Français de Mécanique, Grenoble.

[31] Elahinia, M., M. Hashemi, M. Tabesh et S. Bhaduri. 2012, «Manufacturing and processing of NiTi implants : A review», Progress in Materials Science, vol. 57, p. 911–946.

[32] Favier, D., Y. Liu, L. Orgeas, A. Sandel, L. Debove et P. Compte-Gaz. 2006, «Influence of thermomechanical processing on the superelastic properties of a Ni-rich Nitinol shape memory alloy», Materials Science and Engineering : A, vol. 429, p. 130–136.

[33] Favier, D., L. Orgéas, G. Rio et Y. Liu. 2010, S(3)T Eurocores 2010 School and Symposium on Smart Structural Systems Technologies, chap. Elastohysteresis modelling of ferroelastic and pseudoelastic behaviour, Eurocores, p. 249–261.

[34] Flechter, D. et R. D. Mullins. 2010, «Cell mechanics and the cytoskeleton», Nature, vol. 463, p. 485–492.

[35] Gall, K., H. Sehitoglu, Y. Chumlyakov et I. Kireeva. 1999, «Tension-compression asymmetry of the stress-strain response in aged single crystal and polycrystalline NiTi», Acta Materialia, vol. 47, p. 1203–1217.

[36] Garboczi, E., K. Snyder, J. Douglas et M. Thorpe. 1995, «Geometrical percolation-threshold of overlapping ellipsoids», Physical Review E, vol. 52, n° 1, p. 819–828.

[37] Geetha, M., A. Singh, R. Asokamani et A. Gogia. 2009, «Ti based biomaterials, the ultimate choice for orthopaedic implants - a review», Progress in Materials Science, vol. 54, p. 397–425.

[38] Gibson, L. et M. Ashby. 2001, Cellular Solids, 2e éd., Cambridge Solid State Series, Cambridge Univ. Press, UK.

[39] Greiner, C., S. M. Oppenheimer et D. C. Dunand. 2005, «High strength, low stiffness, porous NiTi with superelastic properties», Acta Biomaterialia, vol. 1, n° 6, p. 705 – 716.

[40] Guelin, P. 1980, «Remarques sur l'hystérésis mécanique : les bases d'un schéma thermo-mécanique à structure héréditaire», Journal de Mécanique, vol. 19, p. 217–247.

[41] Guiraud, O., P. Dumont, L. Orgéas et D. Favier. 2012, «Rheometry of compression moulded fibre-reinforced polymer composites : rheology, compressibility, and friction forces with mould surfaces», Compososite Part A, vol. 43, p. 2107–2109.

[42] Hall, L. J., V. R. Coluci, D. S. Galvao, M. E. Kozlov, M. Zhang, S. O. Dantas et R. H. Baughman. 2008, «Sign change of Poisson's ratio for carbon nanotube sheets», Science, vol. 320, n° 5875, p. 504–507.

[43] He, G., P. Liu et Q. Tan. 2012, «Porous titanium materials with entangled wire structure for load-bearing biomedical applications», Journal of the mechanical behaviour of biomedical materials, vol. 5, p. 16–31.

[44] He, G., P. Liu, Q. Tan et G. Jiang. 2013, «Flexural and compressive mechanical behaviors of the porous titanium materials with entangled wire structure at different sintering conditions for load-bearing biomedical applications», Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials, vol. 28, n° 0, p. 309 – 319.

[45] He, G., Q. Tan, G. Jiang et Q. Li. 2014, «A novel mechanism for auxetic behavior in entangled materials with a spiral wire structure», Smart materials and structures, vol. 23, p. 095 011.

[46] Holmes, G., K. Rice et C. Snyder. 2006, «Ballistic fibers : A review of the thermal, ultraviolet and hydrolytic stability of the benzoxazole ring structure», Journal of Materials Science, vol. 41, n° 13, p. 4105–4116.

[47] Itin, V., V. Gyunter, S. Shabalovskaya et R. Sachdeva. 1994, «Mechanical properties and shape memory of porous nitinol», Materials Characterization, vol. 32, p. 179–187.

[48] Jiang, G. et G. He. 2014, «Enhancement of the porous titanium with entangled wire structure for load-bearing biomedical applications», Materials & Design, vol. 56, n° 0, p. 241 – 244.

[49] Jiang, H. et L. Rong. 2006, «Ways to lower transformation temperatures of porous niti shape memory alloy fabricated by self-propagating high temperature synthesis», Materials Science Engineering A, vol. 438, p. 883–886.

[50] Kopperdahl, D., E. Morgan et T. Keaveny. 2002, «Quantitative computed tomography estimates of the mechanical properties of human vertebral trabecular bone», Journal of Orthopaedic Research, vol. 20, p. 801–815.

[51] Krishna, B. V., S. Bose et A. Bandyopadhyay. 2007, «Laser processing of net-shape NiTi shape memory alloy», Metallurgical and Materials Transactions A, vol. 38A, n° 5, p. 1096–1103.

[52] Lagoudas, D. et E. Vandygriff. 2002, «Processing and characterization of NiTi porous SMA by elevated pressure sintering», Journal of Intelligent Material Systems and Structures, vol. 13, p. 837–850.

[53] Latil, P. 2012, Micromécanismes de déformation de mèches de fibres saturées, thèse de doctorat, Université de Grenoble, France.

[54] Latil, P., L. Orgéas, C. Geindreau, P. Dumont et S. Rolland du Roscoat. 2011, «Towards the 3D in situ characterisation of deformation micro-mechanisms within a compressed bundle of fibers.», Composites Science and Technology, vol. 71, p. 480–488.

[55] Lebreton, C. 2011, «Alliages à mémoire de forme de type nickel titane», Les techniques de l'ingénieur, p. 1–5.

[56] Lhuissier, P., M. Scheel, L. Salvo, M. D. Michiel et J. Blandin. 2013, «Continuous characterization by X-ray microtomography of damage during high-temperature deformation of magnesium alloy», Scripta Materialia, vol. 69, n° 1, p. 85 – 88.

[57] Liu, P., G. He et L. Wu. 2009, «Impact behavior of entangled steel wire material», Materials Characterization, vol. 60, n° 8, p. 900 – 906.

[58] Liu, P., G. He et L. Wu. 2009, «Structure deformation and failure of sintered steel wire mesh under torsion loading», Materials and Design, vol. 30, n° 6, p. 2264 – 2268.

[59] Liu, P., G. He et L. Wu. 2009, «Uniaxial tensile stress-strain behavior of entangled steel wire material», Materials Science and Engineering : A, vol. 509, n° 1-2, p. 69 – 75.

[60] Liu, P., G. He et L. Wux. 2008, «Fabrication of sintered steel wire mesh and its compressive properties», Materials Science and Engineering : A, vol. 489, n° 1-2, p. 21 – 28.

[61] Liu, P., Q. Tan, L. Wu et G. He. 2010, «Compressive and pseudo-elastic hysteresis behavior of entangled titanium wire materials», Materials Science and Engineering : A, vol. 527, n° 15, p. 3301 – 3309.

[62] Liu, X., Y. Wang, D. Yang et M. Qi. 2008, «Effect of ageing treatment on shape-setting and superelasticity of a nitinol stent», Materials characterization, vol. 59, p. 402–406.

[63] Liu, Y., Z. Xie, J. V. Humbeeck et L. Delaey. 1998, «Asymmetry of stress-strain curves under tension and compression for NiTi shape memory alloys», Acta Materialia, vol. 46, p. 4235–4338.

[64] Lomov, S. V., M. Moesen, R. Stalmans, G. Trzcinski, J. Van Humbeeck et I. Verpoest. 2011, «Finite element modelling of SMA textiles : superelastic behaviour», Journal of the Textile Institute, vol. 102, n° 3, p. 232–247.

[65] Maire, E., P. Colombo, J. Adrien, L. Babout et L. Biasetto. 2007, «Characterization of the morphology of cellular ceramics by 3D image processing of X-ray tomography», Journal of the European Ceramic Society, vol. 27, p. 1973–1981.

[66] Masse, J. et D. Poquillon. 2013, «Mechanical behavior of entangled materials with or without cross-linked fibers», Scripta Materialia, vol. 68, p. 39–43.

[67] Masse, J., L. Salvo, D. Rodney, Y. Bréchet et O. Bouzaziz. 2006, «Influence of relative density on the architecture and mechanical behaviour of a steel metallic wool», Scripta Materialiaaterialia, vol. 54, p. 1379–1383.

[68] Masse, J.-P. 2009, Conception optimale de solutions multimatériaux multifonctionnelles : l'exemple de structure sandwiches à peaux en acier - choix des matériaux et développement de nouveaux matériaux de cœur, thèse de doctorat, université de Grenoble, France.

[69] Orgéas, L., P. Dumont, J. Vassal, O. Guiraud, V. Michaud et D. Favier. 2012, «In-plane conduction of polymer composites plates reinforced with architectured networks of copper fibres», Journal of Materials Science, vol. 47, p. 2932–2942.

[70] Orgéas, L. et D. Favier. 1995, «Non-symmetric tension compression behaviour of NiTi alloy», Journal de Physique IV, vol. C8, p. 605–610.

[71] Orgéas, L. et D. Favier. 1998, «Stress-induced martensitic transformation of a NiTi alloy in isothermal shear, tension and compression», Acta Materialia, vol. 46, p. 5579–5591.

[72] Orgéas, L., Y. Liu et D. Favier. 1997, «Experimental study of mechanical hysteresis of NiTi during ferroelastic and pseudoelastic deformation», Journal de Physique IV, vol. C5, p. 477–482.

[73] Orgéas, L., A. Vivet, D. Favier, C. Lexcellent et Y. Liu. 2004, «Hysteretic behaviour of a Cu-Zn-Al single crystal during superelastic shear deformation», Scripta Materialia, vol. 51, p. 37–45.

[74] Ortin, J. 1992, «Preisach modeling of hysteresis for a pseudoelastic Cu-Zn-Al single crystal», Journal of Applied Physics, vol. 71, p. 1454–1461.

[75] Otsuka, K. et X. Ren. 2005, «Physical metallurgy of TiNi-based shape memory alloys», Progress in Materials Science, vol. 50, p. 511–618.

[76] Peix, G., P. Duchauvelle et N. Freud. 2000, X-ray tomography in material science, chap. General principles, Hermes Science Publication, p. 15–21.

[77] Pelton, A., J. DiCello et S. Miyazaki. 2000, «Optimisation of processing and properties of medical grade Nitinol wire», dans Proceedings of the International Conference on Shape Memory and Superelastic Technologies SMST 2000, vol. 9(1), édité par S. Russell et A. Pelton, p. 107–118.

[78] Picu, C. 2011, «Mechanics of random fiber networks - a review», Soft Matter, vol. 7, p. 6768–6785.

[79] Poquillon, D., B. Viguier et E. Andrieu. 2005, «Experimental data about mechanical behaviour during compression tests for various matted fibres», Journal of Materials Science, vol. 40, p. 5963–5970.

[80] Prymak, O., D. Bogdanski, M. Köller, S. Esenwein, G. Muhr, F. Beckmann, T. Donath, M. Assad et M. Epple. 2005, «Morphological characterization and in vitro biocompatibility of a porous nickel-titanium alloy», Biomaterials, vol. 26, p. 5801–5807.

[81] Pyzik, A. et C. Li. 2005, «New design of a ceramic filter for diesel emission control applications», International Journal of Applied Ceramic Technology, vol. 2, n° 6, p. 440–451.

[82] Qiao, J., Z. Xi, H. Tang, J. Wang et J. Zhu. 2009, «Influence of porosity on quasi-static compressive properties of porous metal media fabricated by stainless steel fibers», Materials and Design, vol. 30, n° 7, p. 2737 – 2740.

[83] Qiao, J. C., Z. P. Xi, H. P. Tang, J. Y. Wang et J. L. Zhu. 2008, «Compressive property and energy absorption of porous sintered fiber metals», Materials Transactions, vol. 49, n° 12, p. 2919–2921.

[84] Rabinovich, Y. I., J. J. Adler, A. Ata, R. K. Singh et B. M. Moudgil. 2000, «Adhesion between nanoscale rough surfaces : I. Role of asperity geometry», Journal of Colloid and Interface Science, vol. 232, n° 1, p. 10 – 16.

[85] Ranganathan, S. et S. G. Advani. 1991, «Fiber-fiber interactions in homogeneous flows of nondilute suspensions», Journal of Rheology, vol. 35, n° 8, p. 1499–1522.

[86] Rodney, D., M. Fivel et R. Dendievel. 2005, «Discrete modeling of the mechanics of entangled materials», Physical Review Letters, vol. 95, p. 108 004.

[87] Sastry, A., X. Cheng et C. Wang. 1998, «Mechanics of stochastic fibrous networks», Journal of Thermoplastic Composite Materials, vol. 11, n° 3, p. 288–296.

[88] Schlosser, P. 2008, Influence des aspects mécaniques et thermiques sur les mécanismes de déformation d'alliages NiTi, thèse de doctorat, Université Joseph Fourier Grenoble, France.

[89] Segeren, L., B. Siebum, F. Karssenberg, J. Van den Berg et G. Vancso. 2002, «Microparticle adhesion studies by atomic force microscopy», Journal of Adhesion Science and Technology, vol. 16, n° 7, p. 793–828.

[90] Shaw, J. et S. Kyriakides. 1997, «On the nucleation and propagation of phase transformation fronts in a NiTi alloy», Acta Materialia, vol. 45, p. 683–700.

[91] Shearwood, C., Y. Q. FU, L. Yu et K. A.Khor. 2005, «Spark plasma sintering of NiTi nano-powder», Scripta Materialia, vol. 52, p. 455–460.

[92] Song, G., N. Ma et H.-N. Li. 2006, «Applications of shape memory alloys in civil structures», Engineering Structures, vol. 28, p. 1266 – 1274.

[93] Stackowiak, G. et P. McCormick. 1988, «Shape memory behavior associated with the R and martensitic transformations in a NiTi alloy», Acta Materialia, vol. 36, p. 291.

[94] Stoeckel et Yu. 1991, «Superelastic NiTi wire», Wire Journal lnternational, vol. 3, p. 45–50.

[95] Stoop, N., J. Najafi, F. K. Wittel, M. Habibi et H. J. Herrmann. 2011, «Packing of elastic wires in spherical cavities», Physical Review Letters, vol. 106, p. 214 102.

[96] Stoop, N., F. K. Wittel et H. J. Herrmann. 2008, «Morphological phases of crumpled wire», Physical Review Letters, vol. 101, p. 094 101.

[97] Tadrist, L., M. Miscevic, O. Rahli et F. Topin. 2004, «About the use of fibrous materials in compact heat exchangers», Experimental Thermal and Fluid Science, vol. 28, n° 2-3, p. 193–199.

[98] Tan, Q., P. Liu, C. Du, L. Wu et G. He. 2009, «Mechanical behaviors of quasi-ordered entangled aluminum alloy wire material», Materials Science and Engineering : A, vol. 527, n° 1-2, p. 38 – 44.

[99] Toll, S. 1993, «Note : On the tube model for fiber suspensions», Journal of Rheology, vol. 37, n° 1, p. 123–125.

[100] Toll, S. 1998, «Packing of fiber reinfocements», Polymer engineering and science, vol. 38, p. 1337–1350.

[101] Toll, S. et J.-A. Manson. 1995, «Elastic compression of a fiber network», Journal of applied mechanics, vol. 62, n° 1, p. 223–226.

[102] Vergut, H., L. Delaey, E. Aernoudt et W. Vermeesch. 1987, dans Proceedings of Euromech Colloquium, édité par Euromech, Warzava, Poland.

[103] Viggiani, G., N. Lenoir, P. Bésuelle, M. D. Michiel, S. Marello, J. Desrues et M. Kretzschmer. 2004, «X-ray microtomography for studying localized deformation in fine-grained geomaterials under triaxial compression», Comptes Rendus Mecanique, vol. 332, n° 10, p. 819 – 826.

[104] Viguié, J., P. Latil, L. Orgéas, P. Dumont, S. R. du Roscoat, J.-F. Bloch, C. Marulier et O. Guiraud. 2013, «Finding fibres and their contacts within 3D images of disordered fibrous media», Composites Science and Technology, vol. 89, p. 202 – 210.

[105] Williams, S. R. et A. P. Philipse. 2003, «Random packings of spheres and spherocylinders simulated by mechanical contraction», Physical Review, vol. 67, p. 051 301.

[106] Wu, Y.-n., B. Zhang, F. Li, W. Zhu, D. Xu, P. Hannam et G. Li. 2012, «Electrospun fibrous mats as a skeleton for fabricating hierarchically structured materials as sorbents for Cu^{2+}», Journal of Materials Chemistry, vol. 22, p. 5089–5097.

[107] van Wyk, C. 1946, «Note on the compressibility of wool», Journal of the Textile Institute, vol. 37, p. 285–292.

[108] Zhang, D., F. Scarpa, Y. Ma, K. Boba, J. Hong et H. Lu. 2013, «Compression mechanics of nickel-based superalloy metal rubber», Materials Science and Engineering : A, vol. 580, p. 305 – 312.

[109] Zhang, D., F. Scarpa, Y. Ma, J. Hong et Y. Mahadik. 2014, «Dynamic mechanical behavior of nickel-based superalloy metal rubber», Materials & Design, vol. 56, p. 69 – 77.

[110] Zhang, X., P. Feng, Y. He, T. Yu et Q. Sun. 2010, «Experimental study on rate dependence of macroscopic domain and stress hysteresis in NiTi shape memory alloy strips», International Journal of Mechanical Sciences, vol. 52, p. 1660–1670.

[111] Zhao, Y., M. Taya, yansheng Kang et A. Kawasaki. 2005, «Compression behavior of porous NiTi shape memory alloy», Acta Materialia, vol. 53, p. 337–343.

Liste des figures

1.1 Exemple de hiérarchie multi-échelles des milieux fibreux : un renfort textile constitué de mèches de fibres pour composite, d'après Cornelissen [22]. 5
1.2 Structure du cytosquelette d'une cellule vivante, présentant trois types de fibres : (a) schéma de neurone (b) micrographie de neurone (c) axone (d) cône de croissance (e)microtubule, (f)filament d'actine, (g)filament intermédiaire, d'après Flechter et Mullins [34]. 6
1.3 Un exemple d'application thermique et phonique de matériaux fibreux : la laine de verre. 9
1.4 Microstructures de (a) polystyrène fibreux utilisé comme collecteur d'ions Cu^{2+}, d'après Wu et collab. [106] (b) mullite utilisée comme filtre et catalyseur, d'après Pyzik et Li [81]. 10
1.5 Essais de compression œdométrique sur différents milieux fibreux, d'après Poquillon et collab. [79]. 12
1.6 Poquillon et collab. [79] montrent la mise en place d'un chemin préférentiel lors de la première charge d'un milieu fibreux. 13
1.7 Évolution du coefficient de Poisson, en fonction de la teneur en nanotubes à parois multiples, d'après Hall et collab. [42]. 13
1.8 Effet de la densité ϕ sur le module d'Young E de laines d'acier, d'après Masse et collab. [67]. 14
1.9 Effet du diamètre de fil sur la mécanique dans un milieu fibreux à longueur de fibres constante (a)d'après He et collab. [43] : titane prédéformé et fritté, constitué de fibres longues (b)d'après Courtois [24] : monofilament long en acier inoxydable, sans lien entre fibres. . . 15

1.10 Effet de la présence de ponts entre fibres dans un milieu fibreux 3D aléatoire de fibres de carbone (d'après Masse et Poquillon [66]) lors d'essais de compression. 16
1.11 Effet de la nature de la fibre sur le comportement mécanique en charge lors d'une compression, d'après Toll [100]. P est la contrainte axiale de compression, ϕ la densité relative du milieu et ϕ_c la densité relative de percolation mécanique. 17
1.12 (a) Image 3D d'un échantillon monofilamentaire à fibre d'acier inoxydable initialement droite (b) porosité de mono-filaments enchevêtrés en fonction de la position selon le diamètre de l'échantillon et du diamètre de la fibre, d'après Courtois [24]. 18
1.13 Mésostructures obtenues en remplissant des cavités sphériques avec des fils. La partie haute représente une microstructure où le fil n'est pas sollicité en torsion, alors que le bas représente le remplissage d'une cavité avec blocage de la rotation du fil, d'après Stoop et collab. [95] a), c), e) et g) sont des visualisations de simulations et b), d), f) et h) des tomographies. c), d), g) et h) sont des coupes de a), b), e) et f). . 19
1.14 Diagramme de phase (a) des mésostructures (b) obtenues par expérience et par simulation lors de remplissage de cavités planes, d'après Stoop et collab. [96]. 20
1.15 Effet du frittage SPS sur différentes porosités de monofilament à fibres droites en acier en compression, d'après Courtois [24]. 20
1.16 Procédé de mise en forme basé sur la déformation plastique de fils d'aluminium proposé par Tan et collab. [98]. 21
1.17 Profils de densité de différents procédés de mise en forme de milieux fibreux, caractérisés par micro tomographie, d'après Courtois [24]. Le profil le plus proche de la densité moyenne ("spring") est celui d'un fil prédéformé et enchevêtré. 22
1.18 Effet de la déformation préalable du fil : (a) fil droit comprimé en matrice (b) fil préalablement formé en hélice puis comprimé en matrice, (a) et (b) sont ensuite frittés, d'après Liu et collab. [61]. 22
1.19 Effet de l'ajout de liens en PMMA sur la porosité et la granulométrie de fils autoenchevêtrés en titane, d'après Jiang et He [48]. 23
1.20 Localisation de la déformation lors d'essai de compression sur un milieu monofilamentaire avec lien interfibre en PMMA (a) état initial (b) état final, d'après He et collab. [44]. 23
1.21 (a) Mécanisme de déploiement des spires de l'enchevêtrement entraînant une augmentation de volume du matériau et (b) calcul de l'effet engendré sur le coefficient de Poisson en fonction de l'angle initial des spires θ , d'après He et collab. [45]. 24

1.22 Aire exclue autour d'un cylindre (a) et d'un sphero cyclindre (b) par rapport à des (sphéro)-cylindres orientés d'un angle θ vis-à-vis du cylindre test, d'après Balberg et collab. [8]. 26
1.23 Unité de déformation considérée par l'analyse de Toll [100], dans le cas d'une mésostructure 3D (a) et 2D (b). 29
1.24 Variation des exposants de la loi de van Wyk en fonction de la densité de milieux fibreux. La faible masse surfacique (densité) est proche d'un microstructure à deux dimensions et la plus importante se rapproche d'une microstructure à trois dimensions, d'après Masse et collab. [67]. Les essais sont fait sous chargement uniaxial à vitesse de déformation constante. 30
1.25 (a)Visualisation de la simulation réalisée par Durville [29] pour simuler la compression d'un réseau de fibes élastiques et (b) courbes montrant la contrainte en fonction de la densité issues de ces simulations. 31
1.26 Les différents repères utilisés par la discrétisation de Bergou et collab. [13] : $\mathbf{s}$ l'abscisse curviligne, $\{\mathbf{t}, \mathbf{t}'/\|\mathbf{t}'\|, \mathbf{\Omega}/\|\mathbf{\Omega}\|\}$ le repère de Frenet-Serret, $\{\mathbf{m_1}, \mathbf{m_2}, \mathbf{t}\}$ le repère matériel et $\{\mathbf{d_1}, \mathbf{d_2}, \mathbf{t}\}$ le repère de Bishop. 32
1.27 Nombre de contacts fibre-fibre par fibre (a) et énergie normalisée par fibre (b), d'après Rodney et collab. [86]. 33
1.28 Principe de la micro-tomographie X, d'après Courtois [24]. 34
1.29 Exemple de pontages indésirables entre fibres lors de la squelettisation par Avizo, d'après Courtois [24]. Les fibres sont en semi-transparence et leur squelette en blanc. 36
1.30 Exemple de squelettisation : (a) visualisation 3D des fibres, (b) squelettisation simple, (c) squelettisation après séparation des fibres par seuillage de la carte des distances, d'après Latil [53]. 37
1.31 Évolution du nombre de contacts mesuré par micro-tomographie X dans (a) un milieu de fibres alignées, d'après Latil et collab. [54] (b) une laine d'acier d'après Masse et Poquillon [66] (c) un milieu monofilamentaire d'après Courtois et collab. [25]. 38
1.32 (a) Diagramme de phase du NiTi en fonction de la température et de la contrainte mécanique, et (b) représentation des mailles cristallines du NiTi en fonction de la contrainte et/ou de la température (d'après Schlosser [88]). 40
1.33 Courbe de traction typique d'un NiTi superélastique, d'après Stoeckel et Yu [94]. 41
1.34 Effet de la température sur les comportements du NiTi en traction : la différence entre la ferroélasticité et la superélasticité est visible, avec une transition entre 308 et 318K, d'après Otsuka et Ren [75]. Les pointillés correspondent à un retour par chauffage de l'alliage NiTi. . 43

1.35 Courbe de contrainte-déformation pour un alliage NiTi ferroélastique (sous son point M_f), d'après STOECKEL et YU [94]. 44

1.36 Effet du traitement thermique sur A_f avec $A_f^0 = 11°C$ dans le cas d'AMF NiTi utilisés dans le domaine biomédical, d'après PELTON et collab. [77]. Les fronts représentent le temps nécessaire à une température donnée pour atteindre une valeur donnée de A_f. 45

1.37 Application du NiTi : assemblage de tubes par effet mémoire, d'après LEBRETON [55]. 46

1.38 Comparaison des comportements mécaniques du NiTi et de l'acier inoxydable avec celui de l'os cortical, d'après KRISHNA et collab. [51]. 47

2.1 Illustration of the various shape setting operations followed to produce a homogeneous NiTi entangled single-wire material. 55

2.2 3D view (a), centerline (b) and second order fiber and contact orientation tensors **A** and **B** (e) of a NiTi entanglement with a mean fiber content $\bar{\phi} = 0.36$, together with fiber content profiles $\phi^* = \phi/\bar{\phi}$ along its radius (c) and height (d). The pore size (f), mean curvatures (g) and contact lengths (h) distributions are also shown for both scanned samples. 57

2.3 Illustration of the particle tracking method used to assess the local compressive strain : grey scale (a,b) and segmented (c,d) pictures of the sample before (a,c) and during (b,d) compression. 58

2.4 DSC curves of small portions of the entanglements in *states 1* and *2* (a), tensile stress-strain curves of two straight wires subjected to same thermal history as the entanglements (b), and evolution of the forward stress-induced transformation stresses σ^{tr} with temperature (c). . . . 60

2.5 Typical stress-strain curves obtained during compression load-unload cycles for a sample in *state 1* ($\bar{\phi} = 0.36$, reference testing temperature and strain rate). 62

2.6 Evolution of the compression stress $\sigma_{0.2}$ with strain rate $\dot{\varepsilon}$ ($\bar{\phi}$=0.3 and T=303K) (a) and testing temperature T ($\dot{\varepsilon}$=4 10^{-4} s^{-1}) (b). 64

2.7 Influence of the fiber content $\bar{\phi}$ and maximum compression strain ε^{max} on stress-stress curves (a), stress $\sigma_{0.2}$ (b), maximum stress hysteresis σ_{hys}^{max} (c-d) and tangent moduli $d\sigma^+/d\varepsilon$ and $d\sigma^-/d\varepsilon$ (e). 66

2.8 Complex cycling 0-1-2-3-4-5 performed on an entanglement to illustrate its discrete memory both on stress-strain diagram (a) and on the mesostructure (b-g) : images taken at points 1, 1', 3 (c), 3' and 3" (e) were used to compute the image differences 3-3" (d), 3-3' (f) and 1-1' (g), the grey scale histograms of which are plotted in (b). 68

2.9 Evolution of the loss factor η with strain magnitude ε^{max} for two fiber contents $\bar{\phi}$ (a). Material map of the loss factor η versus the Young modulus (from CES [18]) (b) : metallic entanglements are represented by rectangles, with the present NiTi architectures in black. 69

2.10 (a) Stress-strain curves and (b) strain-temperature curves showing the ferroelastic behavior of the entanglements in *state 2* and its associated shape memory effect observed upon stress-free heating after the load-unload sequence shown in (a) ($\bar{\phi}$=0.3). 71

3.1 Montage de suivi optique de la déformation locale lors des essais de traction et de compression. Les ordinateurs sont synchronisés, un dédié au pilotage de la presse et l'autre à l'acquisition. 78

3.2 Procédure utilisée pour évaluer la déformation locale lors d'un essai de traction sur un fil de PA. (a) Image initiale (b) image après segmentation et illustration de la mesure (c) différence entre déformation locale ε_a et globale ε_g. 79

3.3 Exemple de la méthode de mesure des déformations axiale et transverse d'un enchevêtrement de cuivre (k12) en compression : (a) échantillon initial (b) image après compression (c) image après la première segmentation pour déterminer ε_a (d) image après la seconde segmentation pour déterminer ε_d (e) schéma de la découpe des images suivant la déformation locale et de la mesure du diamètre local de l'échantillon d_i. 81

3.4 (a) Courbe de traction d'un fil de cuivre (b) Materiel utilisé pour la compaction des échantillons. De gauche à droite : matrice, piston supérieur, piston inférieur, échantillon de cuivre fini. 82

3.5 Comportement thermomécanique des fils de PA : (a) évolution du module tangent normalisé E'/E'$_0$ en fonction de la température mesurée par DMA (b) courbe de traction de fil initial, après le premier (HT1, 15 min à 160°C) et le second traitement thermique (HT2, 60 min à 160°C). 83

3.6 Échantillon de cuivre préparé pour un essai de traction. 83

3.7 Essais de compression (gauche, N11) et traction (droite, N12) sur deux échantillons de polyamide à $\phi = 0.35$. Évolution de la contrainte axiale σ en fonction de la déformation globale (a,b), de la déformation diamétrale ε_d en fonction de la déformation locale (b,c) et de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation locale (e,f). 85

3.8 Essais de compression (gauche, NiTi1) et traction (droite, NiTi6) sur deux échantillons de NiTi à $\phi = 0.36$. Évolution de la contrainte axiale σ en fonction de la déformation locale en compression et globale en traction (a,b), de la déformation diamétrale ε_d en fonction de la déformation locale (b,c) et de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation locale (e,f). 86

3.9 Essais de compression $\phi = 0.33$ (gauche, k14) et traction $\phi = 0.35$ (droite, k12) sur deux échantillons de cuivre. Évolution de la contrainte axiale σ en fonction de la déformation globale (traction) ou locale (compression) (a,b), de la déformation diamétrale ε_d en fonction de la déformation locale (b,c) et de la déformation volumique ε_v en fonction de la déformation locale (e,f). 87

3.10 Comparaison des échantillons des figures 3.7, 3.8 et 3.9 : (a,b) contrainte de compression en fonction de la déformation locale et de traction en fonction de la déformation globale (c,d) déformation diamétrale en fonction de la déformation locale (e,f) déformation volumique en fonction de la déformation locale. 88

3.11 Compilation des courbes de contrainte-déformation pour tous les échantillons utilisés dans cette partie illustrant l'influence du taux de fibre. (a) PA compression (b) PA traction (c) NiTi compression (d) NiTi traction (e) Cu compression (f) Cu traction. 91

3.12 Effet de la fraction volumique de fibre ϕ sur la contrainte de traction et de compression par comparaison de leur valeur à ε_a =0.10 et 0.25 de déformation pour tous les échantillons. (a) échantillons de PA (b) échantillons de cuivre et de NiTi (c) détail de la région où les échantillons de Cu montre le même comportement que ceux en NiTi. 92

3.13 Effet de la densité relative sur les mécanismes de déformation des échantillons en compression : (a) définition de la mesure de ε_{dil} et ε_{com} (b) comparaison des déformations volumiques en fonction des mécanismes de déformation pour un échantillon de cuivre en compression, (c) évolution de ε_{dil} et ε_{com} en fonction de la densité relative. 94

3.14 Différence de mécanismes de déformation dans les échantillons de cuivre en compression. Déformation typique des faibles densité relatives ($\phi = 0.30$) : avant (a) et après (c) compression des enchevêtrements avec effet de bord et expansion homogène dans la zone centrale. Mécanisme de déformation à plus haut taux de fibre ($\phi = 0.58$) : avant (b) et après (d) compaction de fibres avec apparition de bandes de cisaillement en travers de l'échantillon. Les deux images sont prises à $\varepsilon_g = 0.3$. 95

3.15 Effets du taux de fibres ϕ sur la déformation diamétrale des échantillons en traction (a) méthode de mesure de ε_{exp} et ε_{con} sur une courbe $\varepsilon_d - \varepsilon_a$ (b) comparaison des déformations diamètrales entre trois échantillons de Cu sur la plage de densité étudiée (c) évolution de ε_{exp} et ε_{con} avec ϕ. 96

4.1 (a) Photographie de la presse in-situ et (b) radiographie d'un échantillon en NiTi obtenue dans ce montage. (c) Visualisation du volume reconstruit. 102

4.2 Recalage des courbes mécaniques entre déformation globale et locale. 103

4.3 Description des coupes utilisées pour le calcul de la densité relative ϕ sur les tomographies : (a) radiale (b) axiale. Les zones sombres correspondent aux zones dans lesquelles la porositée est analysée. . . 103

4.4 Discrétisation de la fibre pour une utilisation dans le code d'éléments discrets utilisé dans ce travail. 105

4.5 Procédé de production des échantillons virtuels : un tube de la dimension du ressort souhaité est tiré aléatoirement dans un cylindre (a) puis le ressort est construit dans ce tube (b) et le tout est comprimé et relaxé jusqu'aux dimensions voulues (c). 106

4.6 Visualisation de l'échantillon virtuel dans sa configuration initiale. Les rectangles rouges représentent les régions dont les nœuds sont bloqués verticalement pour appliquer les déformations de compression. 107

4.7 Illustration des notations utilisées dans les définitions des grandeurs mesurées à partir du squelette : $\mathbf{a_i}$ vecteur orientation du segment de la fibre, l_j longueur contact du contact élémentaire, $\mathbf{b_j}$ vecteur d'orientation de la normale au contact, l_C longueur totale du contact. 108

4.8 Procédé de mesure du volume des échantillons pour la déformation volumique : définition des éléments géométriques utilisés dans la détermination du volume. 110

4.9 (a)Comparaison de la réponse mécanique lors des essais de compression expérimentaux et numériques (b) Agrandissement de la première partie de la courbe mécanique en charge et traits de construction pour les déformations aux changements de pente. 111

4.11 Évolution de la déformation des échantillons au cours d'un essai de charge-décharge en compression (a) *in-situ* et (b) en simulation (cf figure 4.9). (b) La couleur des nœuds de la simulation correspond à l'amplitude de leur déplacement axial par rapport à la configuration initiale, le bleu correspondant à un déplacement nul et le rouge à un déplacement de 4.7 mm dans la figure et (c) la même échelle est appliquée en soustrayant le déplacement affine des nœuds entre le haut et le bas de la structure. 112

4.12 Déformation volumique ε_v des échantillons numériques et expérimentaux en fonction de la déformation axiale ε_a au cours de l'essai de compression. 113
4.13 Évolution du profil axial de densité de l'échantillon expérimental sur trois points : $\varepsilon = 0$ et 0.22 en chargement et $\varepsilon = 0$ à la décharge. . . 114
4.14 Analyse des mésostructures : variation du nombre de contacts $ln(N_c/N_c^0)$ et de leur longueur totale $ln(l_c/l_c^0)$ lors d'essai *in-situ* et de simulation. 114
4.15 Composantes selon $\mathbf{e_1}$ et $\mathbf{e_3}$ du tenseur (a) d'orientation des fibres et (b) des normales aux contacts pour les tomographies et la simulation. 115
4.16 (a) Définition du modèle de type "wine-rack" : les barres représentent des segments de ressorts du milieu monofilamentaire. (b) Déformation surfacique évoluant au cours de la compression du "wine-rack". . . . 117
4.17 Fonction de Poisson en fonction de la déformation au cours de l'essai de simulation. 118

Nomenclature

$\{\mathbf{t}, \mathbf{t}'/\|\mathbf{t}'\|, \mathbf{\Omega}/\|\mathbf{\Omega}\|\}$	Repère de Frenet-Serret
$\{\mathbf{m_1}, \mathbf{m_2}, \mathbf{t}\}$	Repère matériel
$\{\mathbf{d_1}, \mathbf{d_2}, \mathbf{t}\}$	Repère de Bishop
$\{\mathbf{e_1}, \mathbf{e_2}, \mathbf{e_3}\}$	Repère associé aux échantillons
α	Module de flexion de la simulation (MPa)
β	Module de torsion de la simulation (MPa)
ΔH	Chaleur latente (J)
ε	Déformation logarithmique
ε_a	Déformation locale logarithmique
ε_g	Déformation globale logarithmique
ε_d	Déformation diamétrale logarithmique
ε_v	Déformation volumique logarithmique
η	Facteur de perte
η_d	Unité de déformation
θ	Angle entre deux fibres (°)
κ	Courbure (mm^{-1})
κ_θ	Limite d'élasticité en courbure (MPa)
λ	Distance entre deux points de contacts (mm)
$\mu_s t$	Coefficient de frottement
ν	Coefficient de Poisson
ν_f	Coefficient de Poisson de la fibre
σ	Contrainte ingénieur (MPa)
σ^{tr}	Contrainte de transformation (MPa)
σ^{el}	Contrainte élastique (MPa)
φ	Angle de rotation entre les repères matériel et de Bishop (°)
ϕ	Densité relative

ϕ_c	Densité relative critique
$\phi*$	Densité relative normalisée
$\bar{\phi}$	Densité relative moyenne
ω	Courbure
$\mathbf{A}$	Tenseur d'orientation des fibres
$\mathcal{A}$	Aire d'une coupe d'échantillon
A_s	Austenite start (°C ou K)
A_f	Austenite finish (°C ou K)
$\mathbf{a_i}$	Vecteur d'orientation du segment i de la fibre
$\mathbf{B}$	Tenseur d'orientation des normales aux contacts
$\mathbf{b_i}$	Vecteur normal au contact i
d	Diamètre de l'échantillon
d_f	Diamètre de la fibre
E_f	Module de Young de la fibre
$E_{flexion+torsion}$	Énergie de flexion et torsion
$\mathbf{e_i}$	Segment i de la fibre
F	Force appliqué sur l'échantillon
f	Force appliquée à une unité de déformation
h	Hauteur locale de l'échantillon utilisée pour la déformation locale
H	Hauteur globale de l'échantillon
l_c	Longueur de contact
l_f	Longeur de la fibre
M	Nombre total de segments
m	Torsion
M_f	Martenside finish (°C ou K)
M_s	Martensite start (°C ou K)
N	Nombre total de contacts
n	Nombre de contact élémentaire
N_f	Nombre de fibres
$\bar{N_{fv}}$	Nombre de contacts par unité de volume
$\bar{N_{cf}}$	Nombre de contacts par fibre
r	Facteur de forme de la fibre
s	Abscisse curviligne
T	Température (°C ou K)
V	Volume de l'échantillon
V_f	Volume total de fibre de l'échantillon
V_{ex}	Volume exclu des fibres

Résumé

L'objectif de ce travail est d'élaborer et de caractériser pour des applications biomédicales un matériau auto-enchevêtré à base d'une seule fibre d'alliage à mémoire de forme de type Nickel-Titane. Nous avons optimisé un procédé de fabrication consistant à enchevêtrer et figer un ressort par des traitements thermiques. Les échantillons ont été caractérisés en compression et traction, avec suivi par caméra optique et tomographie in-situ. Les structures obtenues sont homogènes, isotropes, superélastiques à température ambiante jusqu'à des déformations d'au moins 30%, et peuvent devenir ferroélastiques avec un effet mémoire d'au moins 16% par un traitement thermique additionnel. Leur comportement en compression est consolidant puis dilatant et en traction, légèrement auxétique. Une comparaison avec des milieux similaires constitués de fils ductiles et viscoélastiques, ainsi qu'avec des simulations par éléments discrets sur des milieux élastiques sans frottement, montre que les propriétés mécaniques des structures auto-enchevêtrées sont contrôlées par leur architecture singulière, à mi-chemin entre milieux continus et discrets.

Mots-clés : Alliage à mémoire de forme NiTi, matériaux fibreux, matériaux architecturés, propriétés mécanique, microtomographie X, méthode des éléments discrets

---

Abstract

The aim of this work is to process and characterize for biomedical applications, self-entangled structures made of a single NiTi shape memory fiber. We have optimized a processing route consisting in entangling and shape-setting a spring by thermomechanical treatments. The samples were characterized in compression and tension, using optical and x-ray tomographic observations. The structures thus obtained are homogeneous, isotropic, superelastic at room temperature up to strains of at least 30%, and can become ferroelastic with a shape memory effect up to at least 16% strain by an additional heat treatment. The mechanical behavior in compression is first consolidating and then dilating, while in tension, the samples are slightly auxetic. A comparison with similar media made of ductile and viscoelastic fibers, as well as with discrete element simulations on friction-free elastic fibers, show that the mechanical properties of these self-entangled structures are controlled by their unique architecture, in-between continuous and discrete media.

Keywords : NiTi shape memory alloy, fibrous materials, architectured materials, mecanical properties, X-ray microtomography, discrete element method