HAL open science

Développement de modèles multi-échelle et multi-physiques pour la conception de composites à base de liège

Marco Delucia

▶ To cite this version:

Marco Delucia. Développement de modèles multi-échelle et multi-physiques pour la conception de composites à base de liège. Génie des procédés. HESAM Université, 2022. Français. NNT : 2022HESAE036 . tel-03719513

HAL Id: tel-03719513

https://pastel.hal.science/tel-03719513

Submitted on 11 Jul 2022

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.

HESAM UNIVERSITÉ

Arts et Métiers Sciences et Technologies

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES DES MÉTIERS DE L'INGÉNIEUR
Institut de Mécanique et d'Ingénierie de Bordeaux (I2M)
Campus de Bordeaux-Talence

THÈSE

présentée par : **Marco DELUCIA**

soutenue le : **21 Juin 2022**

pour obtenir le grade de : **Docteur d'HESAM Université**

préparée à : **École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers**

Spécialité : **Conception**

Développement de modèles multi-échelle et multi-physiques pour la conception de composites à base de liège

(Development of multi-scale and multi-physics models for the design of cork-based composite structures)

THÈSE co-dirigée par :
M. PAILHES Jérôme et Mme. CATAPANO Anita

et encadrée par :
M. MONTEMURRO Marco

Jury

M. Frédéric DUBOIS, PU, Laboratoire GC2D, Université de Limoges	Président
M. Yao KOUTSAWA, Chercheur senior HDR, Luxembourg Insitute of Science and Technology	Rapporteur
Mme. Angela VINCENTI, MdC HDR, Institut D'Alembert, Université Pierre et Marie Curie	Rapportrice
M. Jean-Marie ARACIL, Dr, Confédération Européenne du Liège	Examinateur
M. Jérôme PAILHES, PU, I2M, Arts et Métiers Bordeaux-Talence	Examinateur
Mme. Anita CATAPANO, MdC HDR, I2M, Bordeaux INP	Examinatrice
M. Marco MONTEMURRO, PU, I2M, Arts et Métiers Bordeaux-Talence	Examinateur
Mme. Agnès DE MONTBRUN, Présidente, Lièges HPK	Invitée
M. Olivier PAULY, Ing., Lièges HPK	Invité

T H È S E

Au peuple ukrainien

Une guerre entre européens est une guerre civile.

Victor Hugo

Peu font la guerre mais tous ont des blessures.

Daniel Desbiens

Tables des matières

Financement **ii**

Remerciements **v**

Introduction **1**
Contexte de la thèse et le projet LIAMA 1
Problèmes liés à la conception des agglomérés de liège 2
Objectifs de la thèse 3
Structure du manuscrit 3

1 Revue de littérature **4**
1.1 Le liège 4
1.1.1 Origine et production 4
1.1.2 Microstructure et propriétés physiques 6
1.2 Les composites à base de liège 13
1.2.1 Le procédé de fabrication 13
1.2.2 Caractéristiques et propriétés 17
1.2.3 Méthodes de conception 20
1.3 Influence des paramètres de conception sur les propriétés de l'aggloméré . . 21
1.3.1 Résumé sur l'effet des paramètres de conception sur les agglomérés . 23
1.4 Modélisation des agglomérés de liège 24
1.5 Méthodes d'homogénéisation des composites à base de particules 28
1.5.1 Propriétés mécaniques 29
1.5.2 Propriétés thermiques 31
1.6 Remarques générales 32

2 Homogénéisation des propriétés thermoélastiques de l'aggloméré **34**
Article de recherche - Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates 34

3 Approche stochastique pour la prédiction des propriétés élastiques dépendant de la température **52**
Article de recherche - A stochastic approach for predicting the temperature-dependent elastic properties of cork-based composites 53

4 Évaluation de l'état de pré-contrainte par simulation du processus de moulage par compression **70**
Article de recherche - Pre-stress state in cork agglomerates: simulation of the compression moulding process 70

5 Conclusions et perspectives **85**
5.1 Conclusions générales 85
5.2 Perspectives 88

Annexe A **91**

Annexe B **95**

Annexe C **97**

Activité de diffusion **104**
Articles de recherche publiés dans des revues internationales 104
Présentations dans des conférences internationales 104
Présentations dans des conférences nationales 104

Bibliographie **112**

Financement

Cette thèse présente une partie des activités menées au sein du projet de recherche LIAMA (LIège Aéronautique MAtériau) financé par la Région Nouvelle-Aquitaine et la société Lièges HPK (2017-2020).

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier Anita, Jérôme et Marco pour l'opportunité qu'ils m'ont donnée et pour tout leur soutien durant ces années de thèse. Sans eux, je ne serais pas devenu l'ingénieur et le chercheur que je suis aujourd'hui.
Par ailleurs, mes sincères remerciements vont au Laboratoire I2M, à la société Lièges HPK et à la région Nouvelle-Aquitaine pour leur soutien au projet LIAMA.
Merci aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer mon travail. Ce fut très constructif d'échanger avec vous sur des sujets de recherche communs.
Je tiens également à remercier tous les professeurs et chercheurs avec qui j'ai eu l'occasion de discuter au fil des ans.
Un merci spécial à tous mes amis, proches et lointains, et collègues du département IMC pour avoir été présents particulièrement dans cette dernière période de ma carrière académique. Merci pour m'avoir soutenu dans les moments difficiles et de m'avoir offert des moments de légèreté et de plaisir.
Merci également à tous mes collègues d'Epsilon et en particulier à Marta pour son soutien à la finalisation de ce travail de thèse.
Je remercie mes parents et mes frères pour leur amour, leurs encouragements et pour m'avoir toujours fait ressentir à quel point ils croyaient en moi.
Enfin, je tiens à remercier la personne qui m'a le plus soutenu et enduré durant ces années de thèse : mon épouse Adele. Je ne pouvais pas rencontrer une personne meilleure et plus belle qu'elle. Merci pour tout et en particulier de m'avoir donné la plus grande joie de ma vie : notre fils Leonardo.

* * *

Desidero ringraziare innanzitutto Anita, Jérôme e Marco per la possibilità che mi hanno dato e per tutto il loro supporto durante questi anni di tesi. Senza di loro non sarei diventato l'ingegnere ed il ricercatore che sono oggi.
Inoltre, i miei ringraziamenti più sinceri vanno al Laboratorio I2M, alla società Lièges HPK e alla regione Nouvelle-Aquitaine per aver supportato il progetto LIAMA.
Grazie ai membri della giuria che hanno accettato di valutare il mio lavoro. É stato molto costruttivo discutere con voi su temi di ricerca comuni.
Vorrei poi ringraziare tutti i professori e ricercatori con i quali ho avuto l'opportunità di confrontarmi in questi anni.
Un particolare ringraziamento va a tutti miei amici, vicini e lontani, e colleghi del dipartimento IMC per essere stati presenti soprattutto in questo ultimo periodo del mio percorso accademico. Grazie per avermi sostenuto nei momenti di difficoltà ed avermi regalato momenti di spensieratezza e divertimento.
Grazie, inoltre, a tutti i miei colleghi di lavoro d'Epsilon ed in particolare a Marta per il

suo appoggio alla finalizzazione di questo lavoro di tesi.
Ringrazio i miei genitori ed i miei fratelli per il loro amore, incoraggiamento e per avermi sempre fatto sentire quanto credessero in me.
Infine, vorrei ringraziare la persona che più mi ha supportato e sopportato lungo questi anni di tesi: mia moglie Adele. Non potevo incontrare una persona migliore e più bella di lei. Grazie per tutto ed in particolare per avermi regalato la gioia più grande della mia vita: nostro figlio Leonardo.

Introduction

Contexte de la thèse et le projet LIAMA

Aujourd'hui, dans le cadre de nombreuses applications industrielles, la recherche de matériaux innovants joue un rôle fondamental. En particulier, les matériaux cellulaires à hautes performances mécaniques, thermiques et/ou acoustiques, ont permis de réaliser des gains substantiels notamment en termes de légèreté et prestations. Dans une optique de développement durable, de nombreuses recherches ont été consacrées, ces dernières décennies, à l'étude d'un matériau cellulaire naturel, réutilisable et recyclable : le liège [1–12]. En effet, grâce à sa microstructure particulière et ses caractéristiques physico-chimiques, le liège présente des propriétés thermiques et acoustiques très intéressantes, qui le rendent apte à de nombreuses applications industrielles, notamment sous forme d'aggloméré (particules de lièges noyées dans une résine). Safran Power Units (SPU), dans le cadre de sa politique de recherche et développement, a entrevu la possibilité d'utiliser et d'exploiter les agglomérés à base de liège produits par la société Lièges HPK. L'application visée est l'entrée d'air d'un générateur de puissance auxiliaire illustrée en Fig. 1.

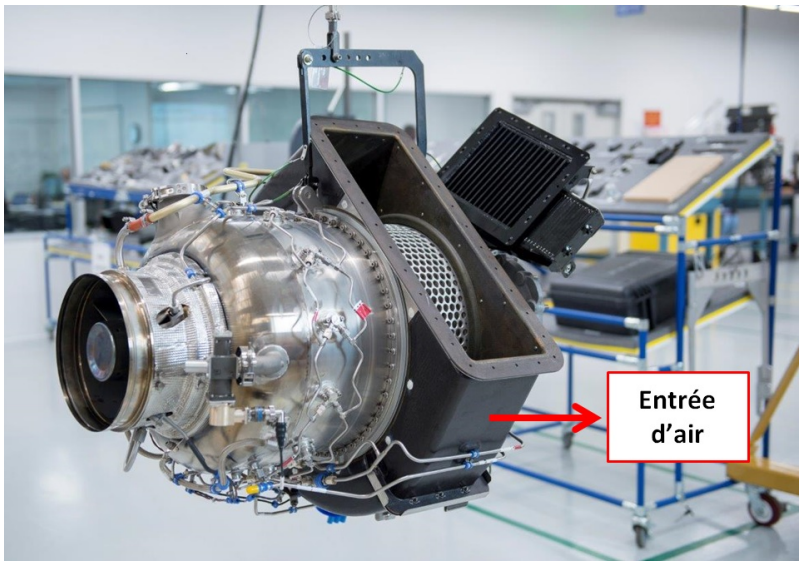


Figure 1: Entrée d'air d'un générateur de puissance auxiliaire fabriqué par SAFRAN Power Units.

Le liège est déjà utilisé dans le secteur aérospatial et nautique grâce à ses propriétés ablatives, d'isolation acoustique et thermique. Des exemples d'applications sont représentés par les systèmes de protection thermique pour SRB (Solid Rocket Booster) et les boucliers thermiques de véhicules dans les missions ARD, Exo-Mars et Beagle 2 [12,13]. Dans ce cadre SPU, Lièges HPK, l'ENSAM et le laboratoire I2M de Bordeaux ont donné vie à une collaboration matérialisée dans le projet LIAMA dont l'objectif général est de

caractériser les agglomérés de liège sous sollicitations sévères et de développer des modèles multi-échelle et multi-physiques afin de déterminer les propriétés de l'aggloméré en fonction des paramètres de conception. Le but final étant celui de définir des règles métiers pour une conception robuste de structures en liège. La première phase du projet LIAMA a prévu la création d'un PoC (Proof of Concept) : la fabrication d'un aggloméré de liège apte à résister au feu afin d'être utilisé en tant que entrée d'air du générateur de puissance auxiliaire. Des tests ont été réalisés, sur différentes typologies d'aggloméré de liège, par un banc d'essais de tenue au feu.
Suite aux résultats positifs de la première phase du projet, deux thèses de doctorat ont été financées. La première thèse (réalisée par L. Le Barbechon [14]), développée au sein du département DuMAS (DUrabilité des Matériaux et des ASsemblages) du laboratoire I2M, porte sur l'étude expérimentale du comportement des composites à base de liège sous sollicitations sévères. La deuxième thèse, objet de ce manuscrit, a été développée, sous la direction de J. Pailhès, A. Catapano et M. Montemurro, au sein du département IMC (Ingénierie Mécanique et Conception) du laboratoire I2M et porte sur le développement de modèles multi-échelle et multi-physiques adaptés à la conception de matériaux composites à base de liège. Entre autre, ces modèles sont développés en tenant compte des contraintes technologiques liés au procédé de fabrication et des paramètres de conception intervenant à toute échelle caractéristique du problème. Ce travail de thèse a vu l'implication de la région Nouvelle Aquitaine, co-financier du projet, la société Lièges HPK, co-financier du projet et entreprise spécialisée dans la fabrication d'agglomérés de liège, et la société Safran Power Units, entreprise spécialisée dans la production de générateurs de puissance auxiliaire et responsable du PoC à partir duquel le projet LIAMA a été développé.

Problèmes liés à la conception des agglomérés de liège

Généralement, un matériau composite à base de particules est constitué d'une matrice renforcée par des inclusions plus rigides (agglomérés de ciment [15, 16], composites à matrice organique [17, 18], etc.). D'autre part, l'aggloméré de liège fait partie d'une classe spéciale de composite à base de particules pour lequel la particule (le granulé de liège) est plus souple que la matrice. Le comportement mécanique du liège est anisotrope et hyperélastique non-linéaire dès les premières phases de chargement. Le liège présente, en plus, une grande variabilité de ses propriétés physiques.
Les propriétés thermomécaniques des composites à base de liège dépendent des principaux paramètres de conception tels que la qualité, la densité, la taille et la fraction volumique des particules de liège, le type et la quantité de résine, la densité globale de l'aggloméré [5]. En outre, le procédé de fabrication de "moulage par compression" (méthode utilisée par la société Lièges HPK) a une influence considérable sur les propriétés physiques de l'aggloméré. Tous ces aspects doivent être pris en compte dans la démarche de modélisation de l'aggloméré afin de prédire correctement ses propriétés physiques. Dans ce contexte, aucune approche systématique n'a pas été proposée en littérature. Dans le domaine industriel, à ce jour, on utilise encore des méthodes empiriques pour la conception de l'aggloméré [19–24]. Donc, dans le cadre de la modélisation et conception de l'aggloméré, plusieurs verrous scientifiques ont été identifiés :

1. Quelle est l'influence des paramètres de conception sur les propriétés élastiques et thermiques de l'aggloméré ?

2. Quel est l'effet de la variabilité des propriétés physiques du liège naturel sur celles de l'aggloméré ?

3. Quelle est l'influence des paramètres du procédé de moulage par compression sur les propriétés de l'aggloméré ?

Objectifs de la thèse

Ce travail de thèse vise à donner une réponse aux questions énoncées ci-dessus afin de donner une première contribution au développement d'une méthodologie générale de conception des agglomérés à base de liège. Dans ce contexte, le travail de thèse a été organisé afin d'atteindre les objectifs partiels suivants :

1. Développement d'un modèle haute-fidélité de l'aggloméré afin de comprendre le comportement thermomécanique local à l'échelle mésoscopique des granules de liège (p.ex. répartition des contraintes, des déformations, des champs thermiques dans les constituants).

2. Évaluation de l'influence de la variabilité du comportement élastique du liège sur les propriétés élastiques équivalentes de l'aggloméré, à températures différentes.

3. Simulation du processus de compression du granulé pour évaluer l'état de pré-contrainte dans l'aggloméré.

Structure du manuscrit

La structure de ce manuscrit a été conçue pour répondre clairement aux trois objectifs caractérisant ce travail. Tout d'abord, un état de l'art sur les propriétés et les applications du liège naturel et des composites à base de liège est fourni dans le Chapitre 1. Le Chapitre 2 présente une toute première étude sur les propriétés élastiques et thermiques des composites à base de liège via la réalisation d'un modèle 2D aux éléments finis (EF) permettant de prendre en compte de la disposition aléatoire et le comportement isotrope-transverse des particules de liège. Dans ce modèle, les paramètres définissant le volume élémentaire représentatif (VER) de l'aggloméré sont : l'orientation, la forme et l'anisotropie des granules, les propriétés et la fraction volumique de la matrice. Dans le Chapitre 3, la variabilité des propriétés élastiques du liège, à différentes températures, est introduite dans le modèle présenté dans le Chapitre 2 et dans un nouveau modèle 3D EF à travers une fonction de densité de probabilité appropriée. Ensuite, l'algorithme de Monte Carlo (MC) est utilisé pour évaluer l'effet de la variabilité des entrées du modèle sur le comportement élastique équivalent, à différentes températures. Le Chapitre 4 est consacré au développement d'un modèle EF capable de reproduire et simuler la phase de compression du granulé de liège (phase initiale du procédé de moulage par compression) afin de prédire l'état de pré-contrainte induit dans le granulé. Un algorithme permettant de simuler la phase de remplissage du moule ainsi que la phase de moulage par compression est présenté. Un chapitre de conclusions et perspectives termine le manuscrit. La rédaction du manuscrit a été réalisée selon le format de "thèse par articles". Trois articles, correspondant aux travaux effectués durant la thèse et publiés dans de revues internationales, ont été intégrés dans le manuscrit.

Chapitre 1

Revue de littérature

Dans ce chapitre, l'état de l'art sur le liège, les composites à base de liège, les études sur l'influence des paramètres de conception sur les propriétés de l'aggloméré, la modélisation des agglomérés de liège et les principales méthodes d'homogénéisation seront présentés.
Dans la Sec. 1.1, un état de l'art sur l'origine, la structure phisico-chimique et les propriétés du liège sont fournis. Une étude bibliographique sur les composites à base de liège fait l'objet de la Sec. 1.2. Des études expérimentales sur l'influence des principaux paramètres de conception sur les propriétés thermomécaniques finales de l'aggloméré, et sur la possibilité de contrôler les propriétés finales en modifiant certains paramètres de conception, sont présentées dans la Sec 1.3. Un état de l'art sur la modélisation des composites à base de liège est présenté dans la Sec. 1.4. Les principales méthodes d'homogénéisation des propriétés élastiques et thermiques sont décrites dans la Sec. 1.5. Enfin, la Sec. 1.6 termine ce chapitre par quelques remarques conclusives.

Remarque. *En raison du format choisi pour cette thèse, la plupart des informations, fournies dans ce chapitre, sont également présentes dans les articles de revue rapportés dans les Chapitres 2-4. Dans chaque article, les informations pertinentes nécessaires pour le bon placement bibliographique, de la partie correspondante du travail, sont brièvement fournies.*

1.1 Le liège

1.1.1 Origine et production

Le liège est un matériau extrait de l'écorce externe du *Quercus Suber L.* (Fig. 1.1). Il joue le rôle de barrière protectrice (appelée phellem en anatomie végétale) contre le feu, les variations de température et d'humidité [25].
Le *Quercus Suber L.*, communément appelé chêne-liège, a une durée de vie qui varie, en moyenne, entre 150 à 200 ans. Grâce à sa bonne capacité de régénération, le liège peut être extrait à intervalles réguliers (généralement tous les 9 ans). Cependant, la première extraction peut être réalisée après pleine maturation, correspondant à un âge d'environ 25 ans, du chêne-liège. Il est répandu principalement dans la péninsule ibérique et, notamment, au Portugal. On le trouve également dans le sud de la France, en Italie et en Afrique du Nord [5]. La distribution du chêne-liège dans la région méditerranéenne est illustrée en Fig. 1.2.
Les chênes-lièges sont des arbres à faible propagation avec un tronc court et des branches

Figure 1.1: Image d'un *Quercus Suber L.* [5].

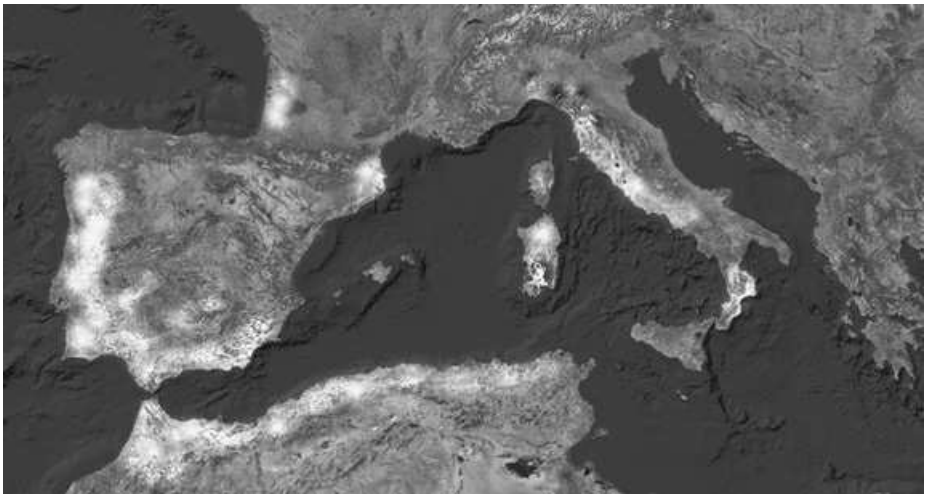


Figure 1.2: Distribution du *Quercus Suber L.* (marquée en blanc) dans la région méditerranéenne [5].

épaisses. Ils n'atteignent pas des hauteurs supérieures à 14-16 m. Par contre, la couronne peut atteindre une très grande dimension (par ex. 500 m^2 de projection de la couronne dans le cas d'arbres matures avec une grande circonférence du tronc).

L'extraction du liège, ou décapage du liège, se fait manuellement comme illustré en Fig. 1.3. D'abord, l'écorce est coupée en grandes planches rectangulaires. Ensuite, elle peut être tirée de l'arbre.

Cette opération est réalisée en exploitant la fragilité du phellogène et des nouvelles couches de cellules de liège sans endommager l'intérieur de l'écorce. Par conséquent, le chêne-liège doit être physiologiquement actif.

La première extraction (premier périderme extrait généralement après 9 ans de vie de l'arbre) donne vie au liège appelé "vierge". En raison de la présence de plusieurs fractures et défauts intérieurs, le liège vierge est déchiqueté afin d'être utilisé sous forme de particules

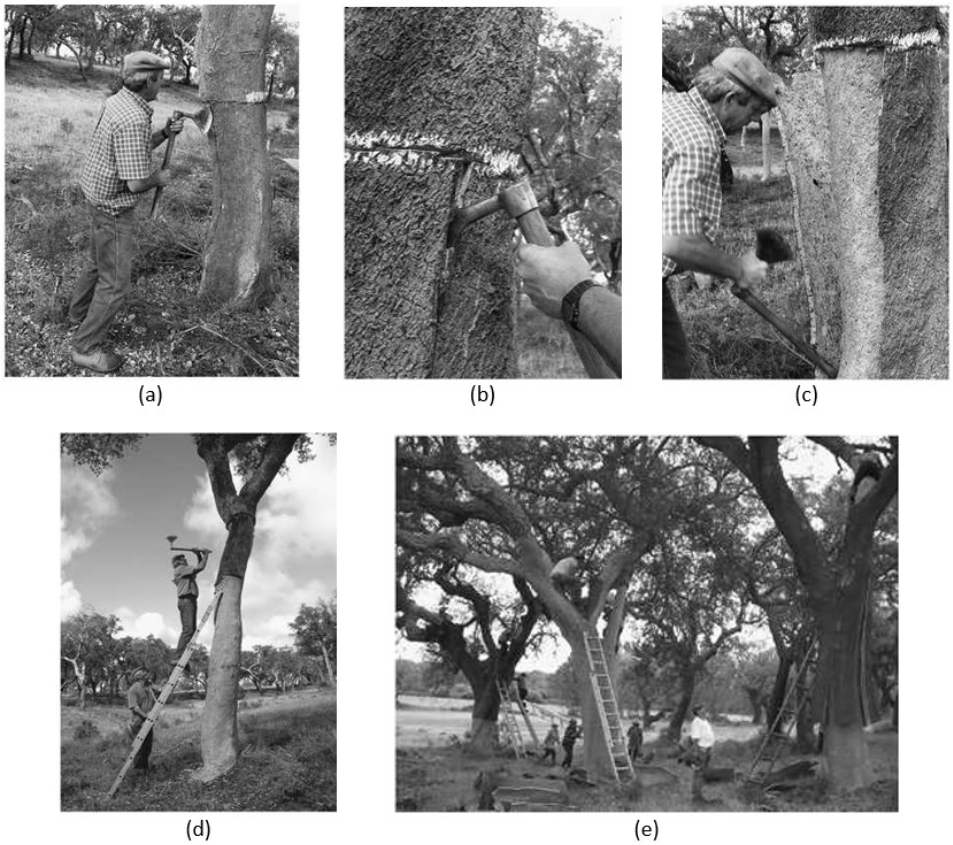


Figure 1.3: Procédure d'extraction du liège : l'écorce du chêne-liège est coupée par une hache le long des lignes horizontales et verticales (a) en profondeur (b). Le manche de la hache est utilisé comme levier pour séparer les planches de liège (c). L'extraction du liège dans la partie supérieure du tronc nécessite l'utilisation d'échelles (d) et de nombreux ouvriers (e).

dans la production des agglomérés. Après la première extraction du liège, un nouveau périderme peut se développer. Après 9 années supplémentaires, une deuxième couche de liège peut être extraite. Dans la plupart des cas, des fissures profondes apparaissent dans la deuxième extraction, rendant le liège utilisable uniquement pour le broyage. Le périderme suivant, ainsi que tous ceux qui peuvent se former plus tard, contiennent le liège appelé de "reproduction". C'est la matière première qui sera utilisée par l'industrie de fabrication des bouchons.
Dans l'exploitation normale d'une chênaie, le liège vierge est obtenu à partir des jeunes arbres qui entrent en production ou des branches élaguées des arbres en croissance déjà en production. Du liège de reproduction mince, occasionnellement, peut être extrait sur des chênes-lièges à la fin de leur vie ou d'arbres morts, malades ou affaiblis. Les types de liège disponibles, leurs principales caractéristiques et utilisations industrielles sont résumés dans le Tableau 1.1.

1.1.2 Microstructure et propriétés physiques

Le liège est un matériau entièrement naturel qui possède des propriétés uniques grâce, principalement, à sa structure physico-chimique : il est léger (sa densité varie généralement entre 120 et 240 kg/m^3), imperméable aux gaz et liquides avec une excellente capacité d'isolation acoustique et thermique, une grande résistance aux champignons et une bonne stabilité chimique [26]. De plus, il possède un coefficient de frottement

Type de liège	Origine et caractéristiques	Utilisation principale
Vierge	Première extraction de liège de jeunes arbres ou de branches élagués des arbres en croissance déjà en production	Trituration pour la production d'agglomérés
Deuxième	Deuxième extraction de liège	Trituration pour la production d'agglomérés
Reproduction	Dès la troisième extraction de liège	Planches pour la production de bouchons, disques et petits objets ou, dans le cas de planches très minces, trituration pour la production d'agglomérés

Tableau 1.1: Différents types de liège issus de l'exploitation de chênes-lièges et leur utilisation [5].

élevé et, du fait de ses propriétés viscoélastiques et de sa compressibilité, une capacité d'amortissement élevée [6]. Les propriétés du liège sont résumées dans les Tableaux 1.2 et 1.3 en relation à la Fig. 1.4.

Constantes élastiques	Compression [1]	Traction [8]
$E_{c1} = E_{c2}$	13 [MPa]	22.1 [MPa]
E_{c3}	20 [MPa]	30.8 [MPa]
G_{c12}	4.3 [MPa]	N/A
$G_{c13} = G_{c23}$	2.5 [MPa]	N/A
ν_{c12}	0.5	N/A
$\nu_{c13} = \nu_{c23}$	0	N/A

Tableau 1.2: Valeurs moyennes des constantes élastiques du liège en compression et traction.

Propriété	Valeur
Densité, kg m^{-3}	120÷180 (reproduction) [1]
	160÷240 (vierge) [1]
Conductivité thermique, W m^{-1} K^{-1}	0.045 (liège) [27]
	0.025 (air) [27]
	0.2 (parois cellulaires du liège) [27]
Coefficient de frottement	0.97 (liège/liège, direction radiale) [28]
	0.77 (liège/liège, direction non radiale) [28]
Coefficient de perte à 0.01 Hz	0.1÷0.3 [1]
Conductivité électrique, S m^{-1}	1.2 x 10^{-10} (25°C) [3]
	1.67 x 10^{-13} (50°C) [3]
Résistivité acoustique, kg m^{-2} s^{-1}	1.2 x 10^{5} [29]
Chaleur spécifique, J kg^{-1} K^{-1}	350 [27]

Tableau 1.3: Propriétés physiques du liège.

En fait, le liège présente une microstructure en nid d'abeille, représentée à la Fig. 1.4, composée de cellules fermées remplies d'un gaz, ressemblant à de l'air, qui représente jusqu'à 90% du volume total. Les cellules apparaissent comme des prismes vides, en moyenne de formes hexagonales, disposées en colonnes parallèles à la direction radiale comme illustré aux Fig. 1.5 et 1.6. Les parois cellulaires ne sont pas rectilignes mais on-

dulées et elles sont constituées pour 45% de subérine, constituant principal et responsable de son imperméabilité, son étanchéité à l'air et son élasticité, 27% de lignine, élément raidisseur, 12% de polysaccharides, ce qui détermine sa texture, 6% de tanins, le composant qui définit la couleur particulière du liège et 5% de céroïdes, un mélange d'eau, de glycérine, de minéraux et d'autres substances [26].

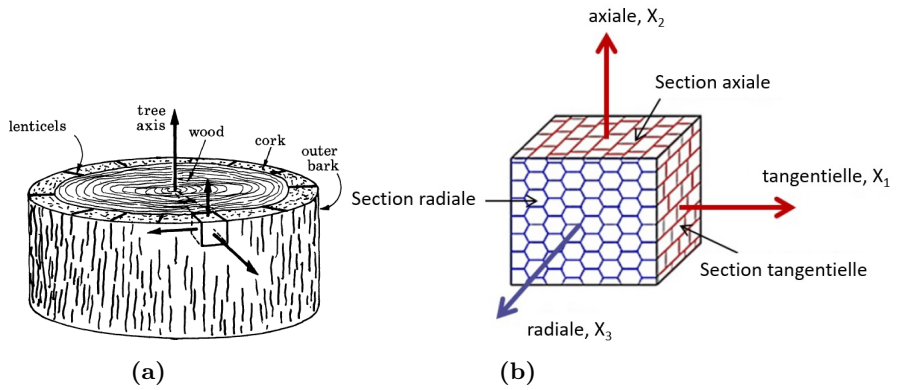


Figure 1.4: Représentation schématique du tronc du chêne-liège (a) [1] et de la microstructure en nid d'abeille du liège avec son repère matériel (b).

Une cellule typique de liège est illustrée en Fig. 1.5b. Elle possède, en moyenne, les caractéristiques suivantes : une hauteur de 40 µm, une largeur de 20 µm, une épaisseur de paroi de 2 µm et une densité de la paroi cellulaire d'environ 1150 kg/m^3 [1].

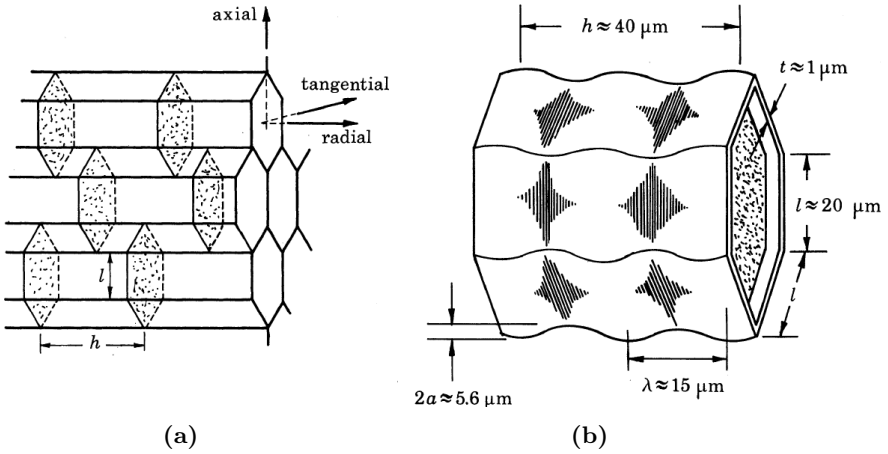
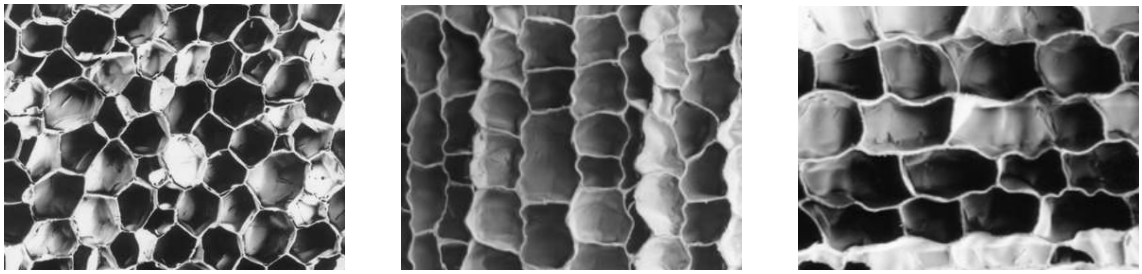


Figure 1.5: La disposition et la forme des cellules de liège (a) et une cellule ondulée avec ses dimensions (b) [1].

La porosité du liège dépend de la présence de canaux appelés lenticelles. Une lenticelle est un petit canal circulaire qui permet l'échange d'oxygène et dioxyde de carbone entre l'extérieur et les tissus profonds internes du chêne-liège. Des lenticelles (lignes noires traversant le liège) sont illustrées en Fig. 1.7. Les canaux lenticulaires varient considérablement, en dimensions, en fonction de la génétique de l'arbre (pores de moins de 0.1 mm^2 de section transversale à plus de 100 mm^2). La quantité de canaux lenticulaires est généralement définie par un coefficient de porosité (rapport entre la section transversale des pores et la surface totale de la section du liège) qui varie généralement entre 2% et un peu plus de 15% [11]. La qualité du liège est principalement déterminée par sa porosité et par des défauts qui peuvent apparaître occasionnellement. Par exem-



(a) (b) (c)

Figure 1.6: Structure du liège observée par microscopie électronique à balayage : section radiale (a), axiale (b) et tangentielle (c) [11].

ple, pour le classement des bouchons en liège, la porosité est l'un des paramètres les plus importants : les bouchons avec petits canaux lenticulaires et un coefficient de porosité faible sont classés de bonne qualité, tandis que les bouchons de basse qualité présentent des grands canaux lenticulaires et un coefficient de porosité élevé [4]. La composition chimique du liège est très variable notamment en termes de teneur en subérine et lignine. En particulier, la variabilité de la valeur de la teneur en subérine dépend de la quantité et de la taille des lenticelles (généralement, plus la quantité et le diamètre des canaux sont petits, plus la teneur en subérine est faible) [30].

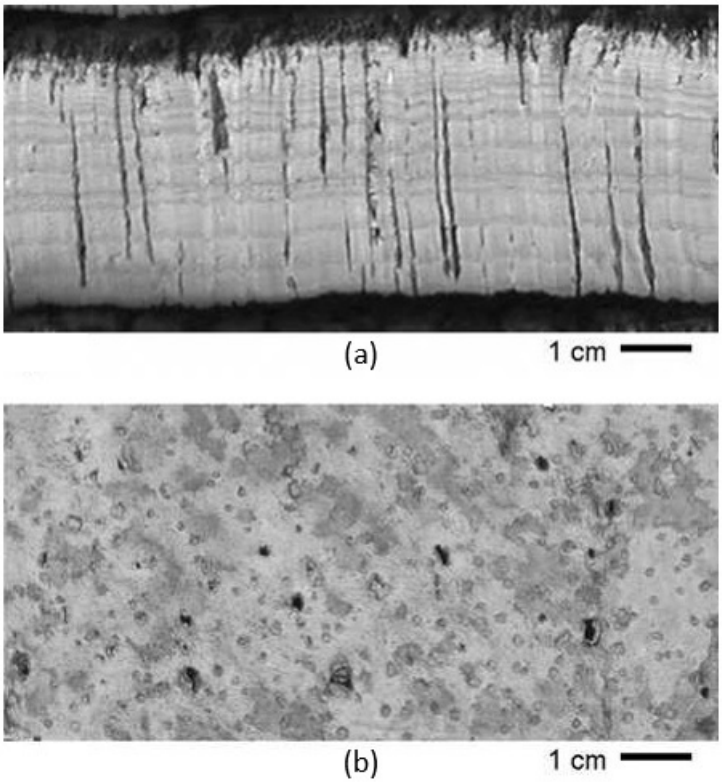


Figure 1.7: Lenticelles traversant le liège (a) et leur section circulaire (b) [5].

Le comportement en compression du liège, chargé le long de la direction radiale et non radiale, est illustré en Fig. 1.8. Les courbes contrainte-déformation montrent un comportement typique des matériaux hyperélastiques. Il est possible d'identifier, le long des courbes, trois régions associées à trois différents phases [1, 2, 7] : une petite

région élastique-linéaire (jusqu'à 5% de déformation normale), dans laquelle les cellules ont tendance à se plier de façon élastique par un processus entièrement réversible, une phase de plateau (jusqu'à 50% de déformation normale) correspondant au flambage des cellules suivie d'une dernière phase dans laquelle les cellules ont tendance à s'écraser et le matériau à se densifier (jusqu'à 70% de déformation normale). Durant cette dernière phase, les parois cellulaires déformées entrent en contact et les vides ont tendance à disparaître.

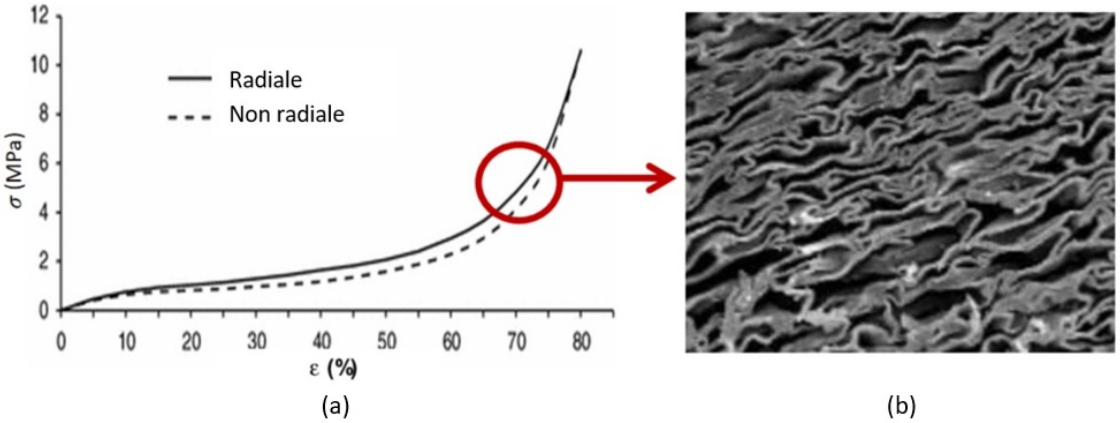


Figure 1.8: Courbes contrainte-déformation en compression du liège sollicité le long de la direction radiale et non radiale (a) et une image au microscope de la déformée en phase de densification (b) [11].

En compression, le liège présente une symétrie circulaire le long de l'axe radial, comme montré par les valeurs des constantes élastiques listées dans le Tableau 1.2, raison pour laquelle il peut être considéré comme un matériau transversalement isotrope. En particulier, le module d'Young le long de l'axe radial est environ le double des deux autres directions. De plus, lorsque le liège est comprimé le long de l'axe radial, le coefficient de Poisson est nul car les parois cellulaires se plient comme le soufflet d'un accordéon.
Le comportement en traction du liège est assez différent de celui en compression. En fait, comme le montre la courbe contrainte-déformation en Fig. 1.9 pour une charge de traction le long de la direction axiale, le liège présente un comportement élastique-linéaire initial jusqu'à environ 2% de déformation normale. Après cette première phase, le liège montre un comportement non-linéaire jusqu'à la rupture du matériau pour une déformation normale d'environ 7%. Ce type de comportement en traction est commun aux matériaux cellulaires. Dans le domaine élastique-linéaire, le liège montre une rigidité considérablement plus élevée en traction qu'en compression comme illustré au Tableau 1.2. En fait, les parois cellulaires du liège sont des feuilles ondulées et pour ce type d'éléments la rigidité dépend généralement de l'amplitude des ondulations. En particulier, la rigidité augmente lorsque l'amplitude des ondulations diminue. Ainsi, lorsque le liège est soumis à une sollicitation de traction, les ondulations des parois cellulaires diminuent. Comme le montre le Tableau 1.2, seulement des valeurs du module d'Young en traction sont présentes en littérature. Pour cette raison, il n'est pas possible de définir une symétrie élastique du comportement du liège en traction comme pour le cas du comportement en compression.

Un coefficient de frottement élevé et des bonnes propriétés d'amortissement sont déductibles en analysant les boucles de contrainte-déformation pour le liège chargé à une déformation progressivement plus élevée. Comme le montre la Fig.1.10, chaque cycle de chargement et de déchargement a une grande surface qui indique une grande dissipation d'énergie. Ce dernier comportement peut être traduit numériquement par le coefficient de

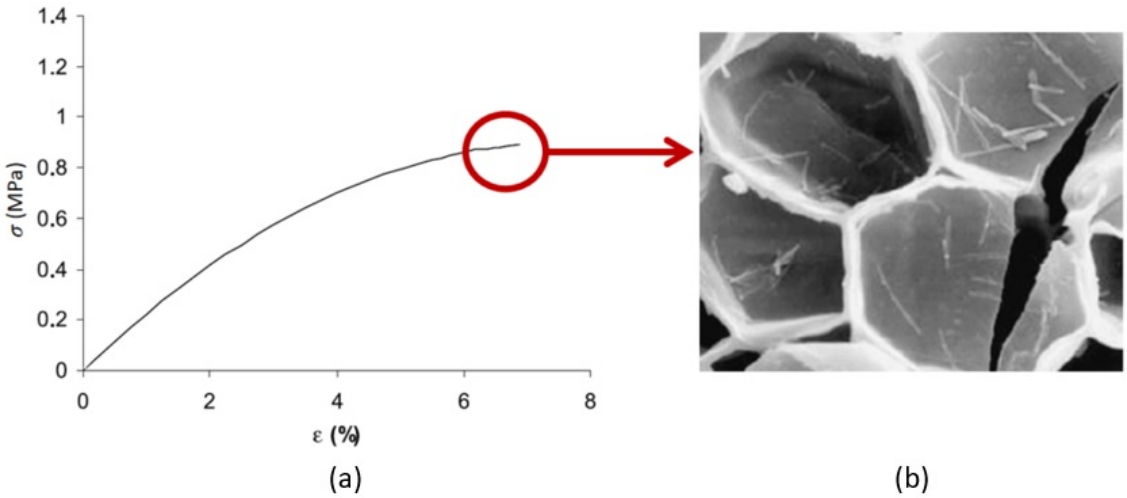


Figure 1.9: Courbe contrainte-déformation en traction du liège sollicité selon la direction axiale (a) et une image au microscope de cellules fissurées (b) [11].

perte :

$$\eta_i = D/2\pi U \tag{1.1}$$

où D est l'énergie dissipée dans un cycle de traction-compression complet et U est l'énergie maximale stockée pendant le cycle. Le liège a des valeurs du coefficient de perte élevées : de 0.1 pour de faibles déformations le long de la direction radiale à 0.3 pour de grandes déformations selon les directions axiale et tangentielle.

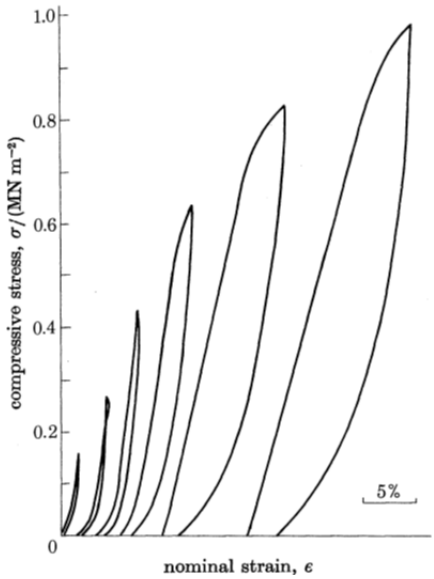


Figure 1.10: Courbes contrainte-déformation pour le liège sollicité progressivement en compression [1].

Les propriétés élastiques du liège, tant pour la compression que la traction, dépendent principalement de sa densité et de sa qualité. Généralement, plus la densité est élevée, plus le module d'Young sera élevé. De plus, le liège de mauvaise qualité (porosité plus élevée)

montre un module d'Young supérieur au liège de bonne qualité. L'effet de la porosité sur la rigidité est difficile à identifier : une hypothèse est que les canaux lenticulaires, rempli d'un élément raidisseur tel que la lignine, peuvent varier en nombre et en taille [7–10].
Les propriétés du liège dépendent notamment de ses caractéristiques physico-chimiques et en particulier de sa structure cellulaire et composition chimique. Le liège est caractérisé par une structure chimique composée principalement par la subérine, principal polymère qui compose les parois cellulaires et responsable de la souplesse, et par la lignine, un polymère ramifié à structure indéfinie responsables de la résistance [5]. Des travaux expérimentaux ont été menés pour étudier la variabilité de la composition chimique et en particulier de la teneur en subérine et lignine dans le liège. Une grande variabilité de la teneur en subérine a été observée par Lopes *et al.* [30] sur 12 échantillons de liège prélevés dans différentes régions du sud du Portugal. Cette grande variabilité est principalement due à la différente quantité et taille des canaux lenticulaires parmi les échantillons de liège testés. En effet, une grande présence de canaux lenticulaires est généralement corrélée à une grande teneur de lignine (qui se trouve en grande quantité dans les lenticelles) et une plus faible teneur de subérine. Une grande variabilité de la composition chimique, et en particulier de la teneur en subérine et lignine, a également été observée par Pereira [31] dans plusieurs échantillons de liège récupérés dans deux sites de production au Portugal. Les résultats expérimentaux ont montré que la quantité de subérine et lignine est très variable et que cette variabilité peut également être présente pour des chênes-lièges cultivés dans la même zone de production.
La variabilité de la composition chimique affecte les propriétés du liège et en particulier ses propriétés mécaniques. Des études expérimentales ont été menées pour évaluer la variabilité des propriétés mécaniques du liège. Les propriétés élastiques et leur variabilité ont été étudiées par Gibson *et al.* [1] au moyen d'essais de compression effectués sur divers échantillons de liège. Une importante dispersion des valeurs de constantes élastiques du liège à été mise en évidence grâce aux résultats expérimentaux. Les valeurs moyennes de chaque constante élastique, obtenues expérimentalement, montrent un comportement du liège à peu près isotrope-transverse. Dans Oliveira *et al.* [32], les résultats de tests en compression effectués sur 200 échantillons de liège prélevés dans 10 différentes positions géographiques (20 échantillons pour chaque position) ont montré une grande variabilité des propriétés élastiques principalement due à la variabilité de la composition chimique, densité et croissance annuelle des anneaux de liège. De plus, les propriétés physiques varient considérablement en fonction également de la température. Rosa and Fortes [33] ont étudié le comportement en compression du liège à différentes températures au moyen de tests expérimentaux. Les résultats de tests en compression réalisés sur plusieurs échantillons ont montré que les valeurs moyennes des modules d'Young, selon les trois directions, diminuent lorsque la température augmente. En particulier, la plus haute variabilité des propriétés élastiques a été enregistrée à 25°C et 100°C.
Dans la littérature, à notre connaissance, aucun travail n'a été proposé concernant la simulation numérique de l'influence de la variabilité des propriétés mécaniques du liège naturel sur les propriétés finales de l'aggloméré. Pour cette raison, une stratégie d'homogénéisation, basée sur une approche stochastique, est présentée dans le Chapitre 3 afin d'étudier l'influence de la variabilité des propriétés élastiques dépendantes de la température du liège naturel sur les propriétés finales de l'aggloméré.

1.2 Les composites à base de liège

En 1903, les premiers bouchons en liège, fabriqués avec des disques de liège naturel collés sur un corps d'aggloméré de liège, apparaissent sur le marché. Quelques années plus tard, des brevets ont été déposés pour l'utilisation du liège dans les courroies d'entraînement et les pneus. Pendant la Seconde Guerre mondiale, l'aggloméré de liège est utilisé dans de multiples équipements militaires. Dans les années cinquante, une entreprise américaine produit les premiers "carreaux" en aggloméré de liège recouvert d'un film vinyle pour revêtement de sol [5].
Les produits en liège peuvent être classés en deux catégories principales : les produits en liège naturel et les agglomérés de liège. La première catégorie n'introduit pas de processus supplémentaire en plus de la préparation, de la coupe et de la finition du liège naturel. Contrairement, les agglomérés de liège sont obtenus à partir de déchets de l'industrie du liège (comme indiqué dans le Tableau 1.1). Une schématisation du processus de production des agglomérés de liège est illustré en Fig. 1.11. Des écorces de liège inutilisables et des bouchons de liège usagés sont exploités pour produire des granulés de liège. Ceux-ci sont séparés et classés selon la densité et la taille des granules pour la production de deux différentes typologies d'aggloméré : le "liège noir" et le "liège blanc". Le liège noir est normalement utilisé en tant qu'isolant thermique. Le liège blanc est utilisé pour la fabrication de bouchons, revêtements de sol et joints [34].

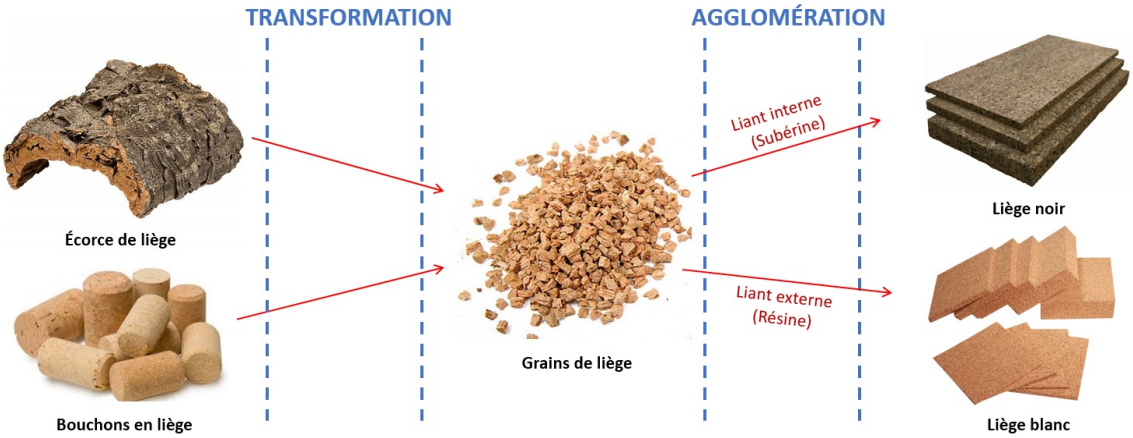


Figure 1.11: Schématisation du processus de production des agglomérés de liège.

1.2.1 Le procédé de fabrication

Le liège noir est produit par l'expansion du granulé de liège en autoclave à haute température (environ 300°C) et pression (environ 40 KPa), sans utiliser des agents de liaison externes. Ce procédé industriel induit la dégradation thermochimique des parois cellulaires du liège avant l'expansion des granules. La subérine libérée pendant le processus d'extraction agit comme un adhésif naturel entre les granules [5].
Le liège blanc, objet de ce travail de thèse, peut être réalisé par quatre différents procédés de fabrication schématisés en Fig. 1.12. Les principaux avantages et inconvénients de chaque procédé sont résumés au Tableau 1.4.

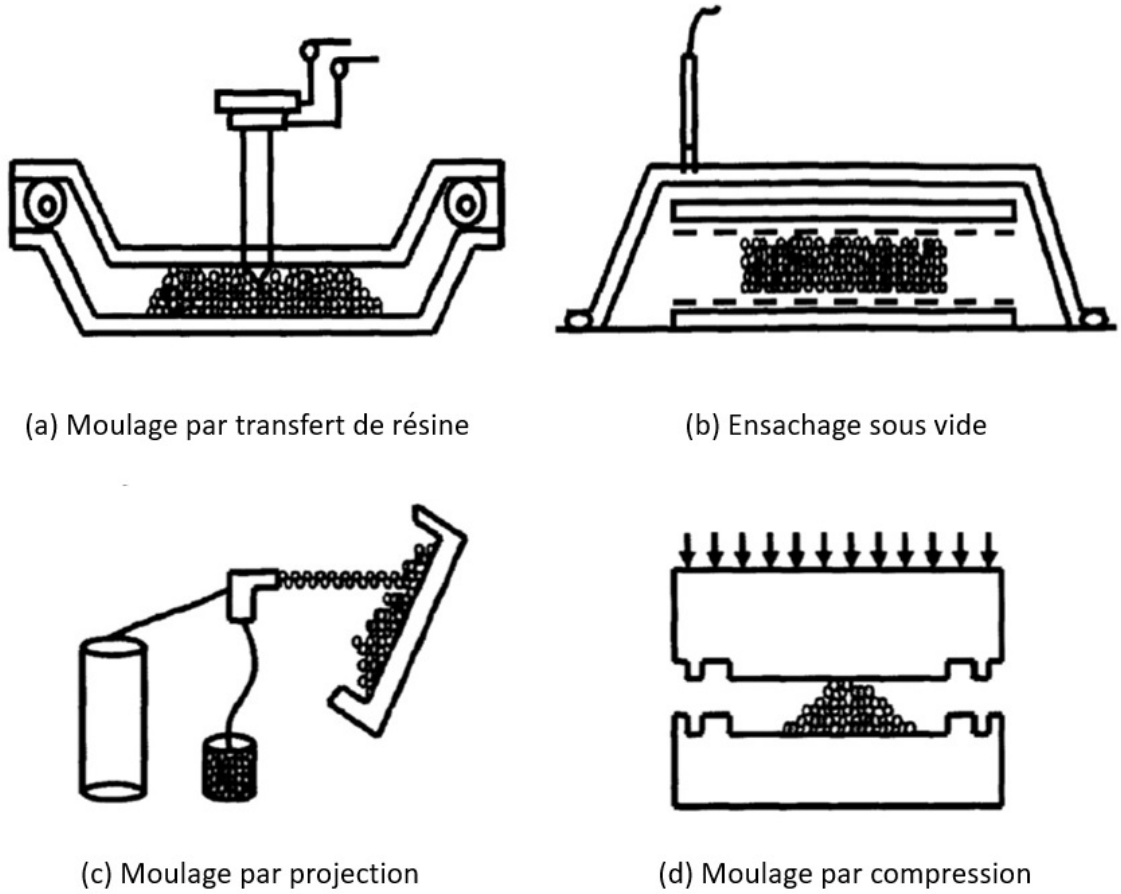


Figure 1.12: Schématisation des différents procédés de fabrication du liège blanc [35].

Le "moulage par transfert de résine" est un procédé de fabrication qui prévoit l'utilisation de moules rigides à deux faces afin de créer une cavité dans laquelle le panneau d'aggloméré de liège sera réalisé. Généralement, le moule est formé d'aluminium ou d'acier. La particularité du moulage par transfert de résine est que le granulé de liège est positionné dans la cavité avant l'introduction de la matrice. Une fois le granulé est inséré dans le moule, ce dernier est fermé. Ensuite, la résine est injectée sous pression en un ou plusieurs points afin de se répandre à l'intérieur du moule et imprégner le granulé. Enfin, le moule est chauffé pour aider au durcissement de la résine. Une fois la résine durcie, les moules peuvent être ouverts et la pièce retirée. Ce procédé de fabrication est adapté pour la production de grandes pièces structurelles et il est conseillé dans le cas de résines thermodurcissables à polymérisation rapide.
Dans le cas de la méthode de "ensachage sous vide", le mélange de particules et résine est positionné au-dessus d'un moule et recouvert d'un sac qui sera scellé autour de la pièce. Une pompe est alors utilisée pour évacuer l'air afin de le rendre "sous vide". Du coût, le mélange est compacté sous la pression atmosphérique. Ce procédé peut être réalisé dans un four afin de réaliser directement la phase de polymérisation de la résine. L'ensachage sous vide est particulièrement adapté pour la fabrication de grandes pièces et il ne nécessite pas de coûts de maintenance élevés en raison de la pression relativement faible de 1 bar. Le fait que la pression n'est pas aussi élevée que dans d'autres procédés limite également les performances de la pièce finale.
Concernant le "moulage par projection", des particules de liège et de la résine catalysée sont pulvérisées sur un moule et sont durcies dans des conditions atmosphériques.

Généralement, on obtient un matériau final caractérisé par une répartition inégale de particules et résine. En plus, l'utilisation d'un spray impose plusieurs restrictions sur la viscosité des matériaux utilisés [36].
Le procédé utilisé par Lièges HPK, le "moulage par compression" ou, en anglais, "compression molding", est le plus coûteux en termes d'équipements mais le plus rapide en termes de production. En fait, c'est un processus qui permet une haute reproductibilité avec la possibilité de réaliser des pièces même complexes.

Procédé de fabrication	**Coût de l'équipement**	**Cadence de production**	**Reproductibilité**	**Complexité de la pièce**
Moulage par transfert de résine	Moyen	Moyenne	Haute	Haute
Ensachage sous vide	Bas	Moyenne	Basse	Haute
Moulage par projection	Moyen	Moyenne	Haute	Haute
Moulage par compression	Haut	Haute	Haute	Haute

Tableau 1.4: Principaux avantages et inconvénients des procédés de fabrication du liège blanc [35].

Généralement, les agglomérés fabriqués à travers le procédé de moulage par compression sont réalisés au moyen d'un moule en deux parties (généralement métallique) délimité par une cavité et une plaque supérieure, dont l'épaisseur varie de 1 mm à plus de 25 mm. Les principales étapes du processus de moulage par compression sont représentées en Fig. 1.13.

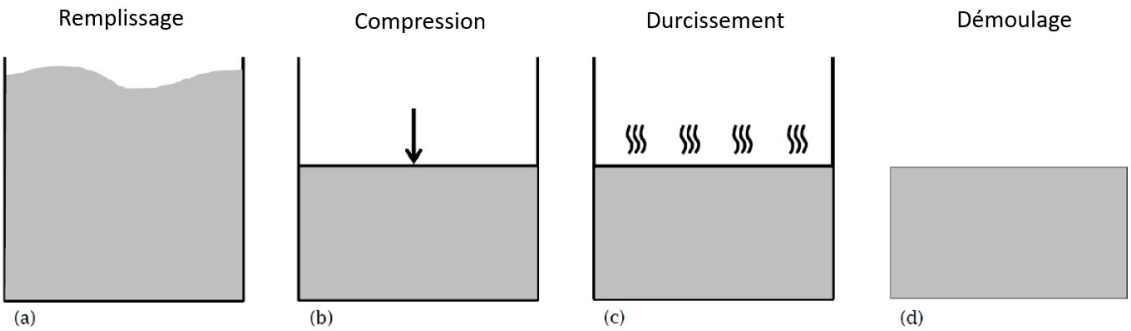


Figure 1.13: Étapes fondamentales du procédé de moulage par compression : la cavité du moule est remplie par le mélange de liège et de résine (a), le matériau est comprimé par une presse hydraulique (b), le moule est verrouillé et placé dans un four (c), une fois refroidi, l'aggloméré peut être démoulé (d).

Tout d'abord, le mélange de particules de liège, de résine et/ou d'autres additifs est versé dans la cavité du moule. Bien que cette étape semble simple, une répartition inégale du mélange peut provoquer un aggloméré caractérisé par une densité non homogène. Par conséquent, il est fondamental d'utiliser un dispositif de mélange approprié (pelle ou mélangeurs hélicoïdaux) pour obtenir une distribution homogène des particules et du liant ainsi qu'une distribution uniforme du mélange dans la cavité du moule pour assurer une densité homogène du produit final. Le mélange, une fois homogène, est compressé à froid pour atteindre la densité souhaitée (Fig. 1.14a). Durant cette phase, le rôle du couvercle est double : il répartit uniformément la pression appliquée par la presse

hydraulique sur le mélange et il fixe le volume final. En fonction de la densité d'aggloméré requise, la pression appliquée par la presse hydraulique peut aller jusqu'à 2 MPa [37]. Pendant cette phase, la pression doit être progressivement augmentée pour permettre une redistribution correcte de la charge au sein de l'aggloméré et, ainsi, pour éviter une distribution de densité in-homogène le long de l'épaisseur de l'aggloméré final (c'est-à-dire une densité plus élevée dans les régions en haut et en bas et une densité inférieure dans la région médiane). Par la suite, le mélange est maintenu comprimé en bloquant l'élément supérieur du moule. Finalement, le moule est positionné dans une étuve (Fig. 1.14b), à des températures comprises entre 100°C et 150°C pendant une période de 1 à 20 heures, pour réaliser la phase de durcissement de la résine.

(a) (b)

Figure 1.14: Phase de compression du mélange dans le moule (a) et étuve pour la polymérisation de la résine (b) (photos prises à l'intérieur de l'usine Lièges HPK).

Le durcissement, ou polymérisation, est une réaction chimique qui provoque la solidification irréversible (matériaux thermodurcissables) de la résine. Enfin, après une phase de refroidissement, le bloc d'aggloméré peut être démoulé et découpé en feuilles de quelques millimètres d'épaisseur (Fig. 1.15). La densité et l'épaisseur finale (Fig. 1.16) sont vérifiées pour chaque feuille. Pour obtenir des matériaux adaptés à la vente et pour réaliser des petites découpes, diverses machines peuvent être utilisées : des scies à ruban, une lame horizontale (Fig. 1.17a), une fraiseuse (Fig. 1.17b) et une ponceuse (Fig. 1.17c). Le procédé de moulage par compression permet de fabriquer des agglomérés avec une densité prédéfinie à une cadence de production très élevée grâce à l'utilisation de fours tunnel (Fig. 1.14b) capables de polymériser plusieurs moules en même temps. A titre d'exemple, la densité prédéfinie des agglomérés pour revêtements muraux est égale à 200-300 kg/m^3. En revanche, pour les applications à hautes performances, la densité de l'aggloméré peut

atteindre 450-600 kg/m^3. Parmi les différents procédés de fabrication, le moulage par compression est le plus utilisé dans la production des agglomérés de liège grâce aux avantages susmentionnés. Les propriétés finales de l'aggloméré produit au moyen du moulage par compression dépendent, en particulier, de la phase de compression. L'aggloméré final est, donc, dans un état de pré-contrainte. Dans la littérature, à notre connaissance, aucune étude n'a pas été proposée pour étudier et évaluer l'état de pré-contrainte au sein de l'aggloméré résultant du moulage par compression. Pour cette raison, une stratégie de modélisation capable de traiter ce problème est présentée au Chapitre 4.

Figure 1.15: Bloc de liège coupé en feuilles (photo prise à l'intérieur de l'usine Lièges HPK).

1.2.2 Caractéristiques et propriétés

Les composites à base de liège peuvent présenter des caractéristiques et propriétés très diverses selon la granulométrie, la quantité de liant, la densité et le procédé de fabrication. Au Tableau 1.5 sont définis trois composites à base de liège différents : leur comportement en compression est très similaire à celui du liège naturel comme montré à la Fig. 1.18. Le comportement en traction, comme montré en Fig. 1.19 pour un aggloméré de liège générique, est également similaire au comportement en traction du liège naturel.

Composite	**Intervalle de taille des granules [mm]**	**Liant**	**Densité [kg/m^3]**
AC216	2-4	Polyurethane	216.2
EC182	4-10	Subérine	182.8
EC122	4-10	Subérine	122.9

Tableau 1.5: Taille des granules, type de liant et densité de trois agglomérés de liège différents [19].

Concernant le comportement des composites de liège sous des charges dynamiques en compression, le taux de récupération est plus rapide dans le cas où la vitesse de compression

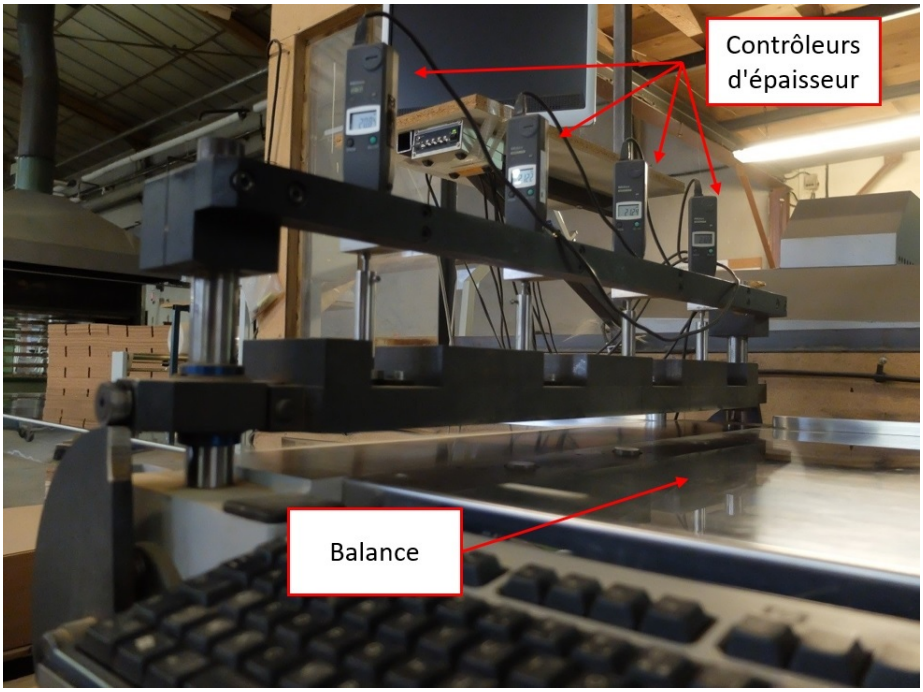


Figure 1.16: Chaque feuille d'aggloméré est pesé et son épaisseur est contrôlée en quatre différents points par une machine (photo prise à l'intérieur de l'usine Lièges HPK).

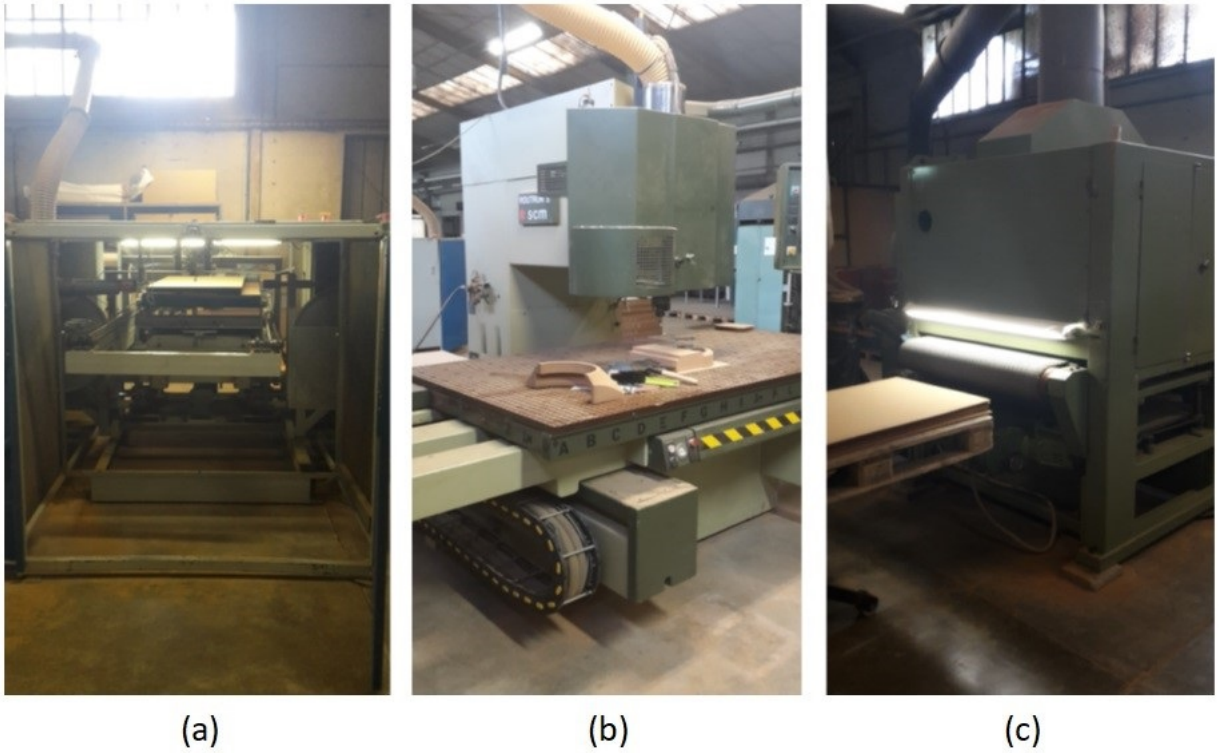


Figure 1.17: Machine à lame horizontale (a), fraiseuse (b) et ponceuse (c) (photos prises à l'intérieur de l'usine Lièges HPK).

est plus élevée et il diminuait sensiblement avec le temps (la reprise dimensionnelle est presque immédiate après décharge) [38]. Ce même comportement a été observé pour le

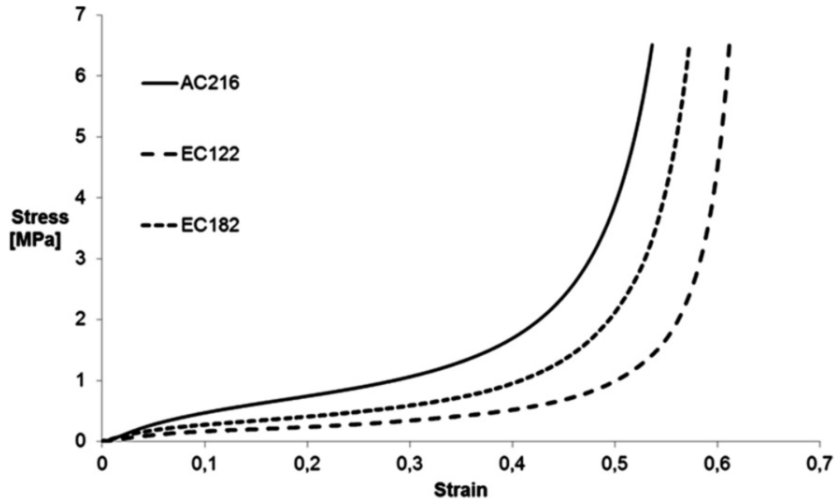


Figure 1.18: Courbes contrainte-déformation en compression de trois agglomérés de liège différents [19].

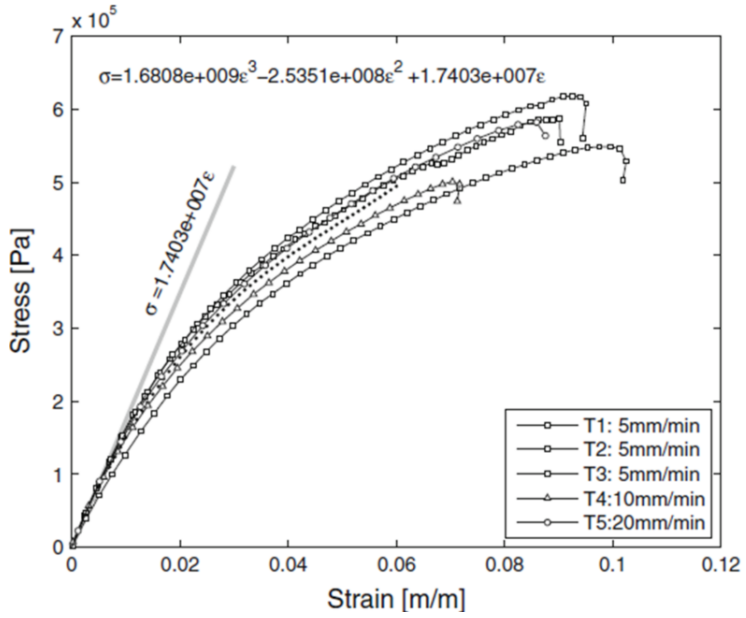


Figure 1.19: Courbes contrainte-déformation en traction d'un agglomeré générique de liège pour une vitesse de chargement en traction de de 5, 10 et 20 mm/min [20].

cas du liège naturel [2]. En fait, la reprise dimensionnelle (qui varie entre 85% et 95% de la taille initiale) est associée au déploiement rapide des parois alvéolaires gauchies qui ont subi un phénomène de flambage lors de la compression du liège.
Les propriétés mécaniques finales de l'agglomeré produit par "moulage par compression" sont influencées par le procédé de fabrication. La pression exercée sur le mélange pendant la phase de compactage conduit à un produit final dans lequel le module d'Young du matériau selon la direction de compactage est généralement inférieur à celui de la direction transversale [22]. En fait, comme on peut le voir en Fig. 1.20, le compactage a tendance à écraser les cellules de liège le long de la direction de compactage. De plus, les cellules sur les bords des particules de liège sont plus déformées que les cellules internes.

Les principales propriétés de certains agglomérés à base de liège disponibles dans la

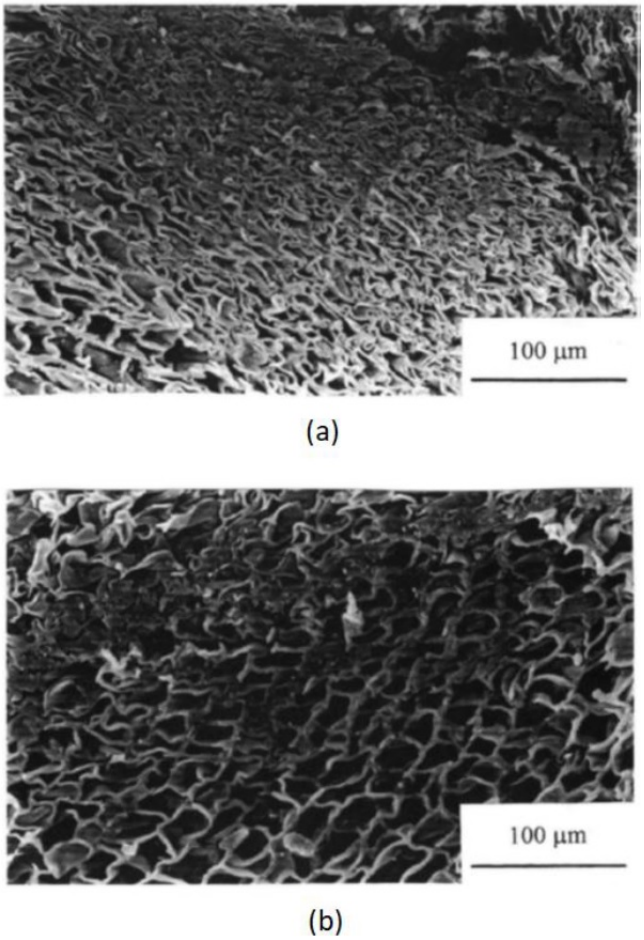


Figure 1.20: Aggloméré produit par moulage par compression : section parallèle (a) et perpendiculaire (b) à la direction de compactage [22].

littérature sont rapportées dans le Tableau 1.6.

Proprieté	**[19]**	**[19]**	**[21]**	**[35]**
Densité [kg/m^3]	157	216	272	580
Intervalle de taille des granules (mm)	2-4	2-4	Petits granules	1-3
Liant	Polyurethane	Polyurethane	Epoxy	Epoxy
Fraction volumique du liant	N/A	N/A	N/A	35
Module d'Young [MPa]	4	6	N/A	180
Conductivité thermique [W/mK]	N/A	N/A	0.047	N/A

Tableau 1.6: Propriétés de certains composites à base de liège disponibles en littérature.

1.2.3 Méthodes de conception

De nos jours, la grande concurrence présente sur les marchés mondiaux pousse les industries et les entreprises à augmenter le niveau de performance de leurs produits. La phase de conception et d'innovation des produits industriels est d'une importance fondamentale pour une entreprise afin de s'assurer un avantage concurrentiel sur le marché [39]. En général, ils existent trois types d'approches de résolution des problèmes pendant la phase de conception et innovation :

1. Un éclair de génie : la solution survient au concepteur par un éclair de génie, parfois accidentel. Par contre, c'est une solution occasionnelle et ce n'est pas une approche générale de résolution des problèmes.

2. Approche empirique : les problèmes sont résolus par "brainstorming" ou par une méthode "essai-erreur". De nombreuses innovations dans le monde industriel sont issues d'une approche empirique. Cependant, elle dépend fortement de la chance et ne prend pas en considération toutes les solutions existantes/possibles.

3. Approche systématique : un processus systématique est utilisé pour révéler l'espace de recherche des solutions à un problème. Une analyse systématique du problème permet d'obtenir une couverture complète de l'espace des solutions afin de trouver la solution optimale.

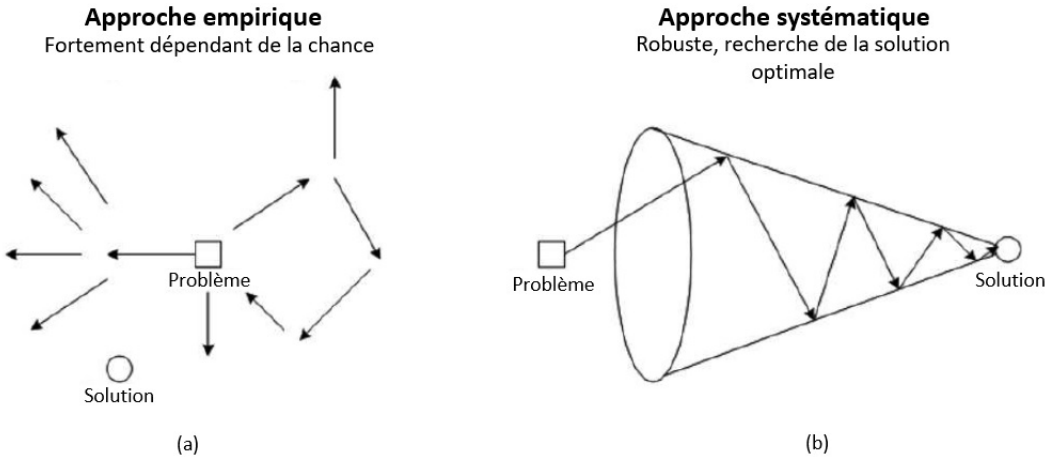


Figure 1.21: Schématisation de l'approche empirique (a) et systématique (b) de résolution des problèmes durant la phase de conception [39].

Une schématisation de l'approche empirique et systématique est illustrée en Fig. 1.21. La conception des agglomérés de liège est généralement basée sur une approche empirique. En particulier, comme le montrent de nombreux articles de littérature [19–24], par une méthode "essai-erreur". Une fois que la fonction et les caractéristiques de l'aggloméré à concevoir sont définies, certains paramètres des conception sont choisi en fonction de leur influence sur les propriétés finales recherchées et de leur interdépendance. Leur valeurs sont déterminées en fonction de l'expérience et de problèmes similaires déjà résolus. L'aggloméré est ensuite produit et testé (essai). S'il n'atteint pas les propriétés recherchées (erreur), de nouvelles valeurs sont choisies et un nouveau aggloméré est produit et testé. La démarche "essai-erreur" est répétée jusqu'à ce que l'aggloméré final possède les propriétés souhaitées. Une telle procédure a un coût élevé en termes de temps et d'argent par rapport à une approche de conception systématique.

1.3 Influence des paramètres de conception sur les propriétés de l'aggloméré

Les propriétés thermomécaniques des composites à base de liège dépendent des principaux paramètres de conception tels que la qualité, la densité, la taille et la fraction de particules de liège dans le mélange, le type et la quantité de liant et le procédé de

fabrication [7–10, 19, 23, 24]. Jardin *et al.* [19] ont montré, en testant différents types de composites à base de liège, que la densité globale, la granulométrie et le type de liant ont une importante influence sur le comportement mécanique du composite. En particulier, plus la densité finale de l'aggloméré est élevée, plus le module d'Young est élevé. Castro *et al.* [21] ont évalué l'opportunité d'exploiter les agglomérés de liège comme matériau d'âme pour les composites à structure sandwich. Des essais en flexion sur différents matériaux d'âme, comme des mousses synthétiques, des agglomérés commerciaux à base de liège et agglomérés de liège composés par une résine époxy, ont montré qu'en réglant des paramètres tels que la taille moyenne des granules de liège, le type et densité de résine, il est possible de contrôler les performances des sandwich. En particulier, les agglomérés de liège à base de résine époxy, par rapport à d'autres matériaux d'âme, sont caractérisés d'une limite de contrainte de cisaillement plus élevée. De plus, les résultats des tests thermiques ont montré que plus la densité de l'aggloméré est faible, plus la conductivité thermique est basse.
La taille des particules de liège ne semble pas particulièrement modifier le comportement thermomécanique des agglomérés de liège [40]. Motte *et al.* [41] ont toutefois observé que les agglomérés de liège avec de petits grains de liège démontraient une rigidité et une recouvrance élastique plus faible qu'un aggloméré possédant des gros grains. Ils ont de plus constaté que le broyage du liège en grains provoquait une détérioration des cellules à la surface des grains, également observé par Crouvisier-Urion *et al.* [42]. Ils ont donc déduit qu'un aggloméré avec des grains de plus petite taille ayant un ratio surface/volume plus important, présenterait une plus grande quantité de cellules endommagées.
L'influence des paramètres de conception sur les propriétés thermomécaniques de l'aggloméré a été étudiée de manière encore plus détaillée par Santos *et al.* [23, 24]. Une analyse de sensibilité a été réalisée sur quatre paramètres de conception différents : le type et la quantité de résine, la densité et la taille des granules. Plus précisément, trois types de résine avec différents degrés de rigidité (flexible, intermédiaire et dure), trois fractions massiques de résine (5, 10 et 15 %) et deux intervalles de taille des granules de liège (0.5-1 et 3-4 mm) ont été adoptées pour créer les différentes compositions d'aggloméré. De plus, la pression appliquée lors de l'étape de compression a été modifiée afin d'obtenir trois densités différentes du composite final (120, 160 et 200 kg/m^3). Un seul paramètre à la fois pouvait varier, tous les autres paramètres étant fixés, pour obtenir les huit compositions et types d'aggloméré listés dans le Tableau 1.7, fabriqués selon la procédé de fabrication du moulage par compression comme illustré en Fig. 1.22.

Aggloméré	**Type de résine**	**Résine [fm.%]**	**Densité [kg/m^3]**	**Taille granules**	k **[W/mk]**	c_p **[MJ/m^{3}K]**
①	Flexible	15	200	0.5-1 mm	0.05631	0.35801
②	Intermédiaire	15	200	0.5-1 mm	0.05568	0.35684
③	Dure	15	200	0.5-1 mm	0.05672	0.34401
④	Flexible	5	200	0.5-1 mm	0.05702	0.34751
⑤	Flexible	10	200	0.5-1 mm	0.05935	0.42638
⑥	Flexible	10	120	0.5-1 mm	0.05	0.24909
⑦	Flexible	10	160	0.5-1 mm	0.05276	0.30113
⑧	Flexible	10	200	3-4 mm	0.05761	0.36851

Tableau 1.7: Conductivité thermique k et chaleur spécifique c_p des huit compositions différentes d'aggloméré de liège [23, 24].

Pour chacune des huit compositions, la conductivité thermique et la chaleur spécifique, dont les résultats sont répertoriés dans le Tableau 1.7, et le comportement mécanique en compression ont été évalués.
Les résultats concernant la conductivité thermique et la chaleur spécifique montrent que le comportement thermique de l'aggloméré n'est pas considérablement influencé par certains

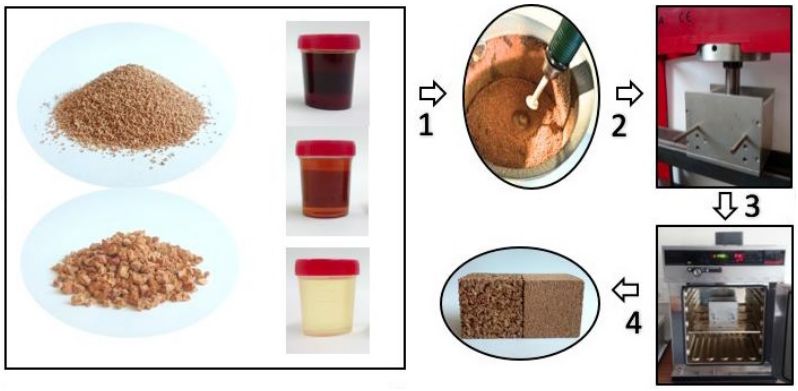


Figure 1.22: Procédure schématique du processus de fabrication des différents agglomérés de liège testés [23].

paramètres tels que la taille des granules, le type et le pourcentage de résine. Contrairement, la densité du composite affecte fortement les propriétés thermiques. En fait, la conductivité thermique est plus élevée et la chaleur spécifique est plus faible dans le cas d'agglomérés plus denses. En effet, la quantité de liège est généralement prédominante dans la composition par rapport à la résine (fraction volumique qui est normalement de l'ordre de 98%). Pour cette raison, plus les particules de liège sont comprimées au cours du processus de fabrication, plus les cellules qui composent la microstructure du liège ont tendance à s'écraser avec une diminution conséquente du gaz interne et une augmentation directe de la conductivité thermique de l'aggloméré.
Dans ce même travail, les résultats des essais de compression montrent qu'il est possible de modifier les propriétés mécaniques de l'aggloméré en changeant le type de résine, la pression appliquée lors du moulage et la taille des granules de liège. En fait, dans le cas d'aggloméré composé d'une résine plus flexible, d'une densité de l'aggloméré plus élevée et une grande taille de granules, la courbe contrainte-déformation est caractérisée par un plateau plus étendu, un retard de l'étape de densification et une déformation maximale plus élevée comme illustré dans les Figs. 1.23-1.25.

1.3.1 Résumé sur l'effet des paramètres de conception sur les agglomérés

La densité de l'aggloméré est l'un des paramètres clés pour augmenter le module d'Young du matériau. En effet, plus l'aggloméré est comprimé lors du processus de fabrication, et donc densifié, plus le matériau final présentera un module d'Young élevé. Le type de résine et la taille des particules ont également un effet sur la réponse élastique du matériau. En particulier, plus la résine utilisée est rigide et les particules grandes, plus le module d'Young de l'aggloméré sera élevé.
L'étape de densification peut être retardée en utilisant des liants plus flexibles, des grains de liège plus petits, en réduisant la densité du matériau et en augmentant la fraction massique du liant. Naturellement, retarder la densification conduit, par conséquent, à une déformation maximale plus élevée.
La densité de l'aggloméré et la taille des particules affectent également les propriétés thermiques. En particulier, plus l'aggloméré est dense et la taille des particules est petite, plus la conductivité thermique et la chaleur spécifique de l'aggloméré seront élevées. En ce qui concerne l'influence de la densité, cela peut se justifier par le fait qu'une plus grande compression du matériau permet de diminuer la porosité à l'intérieur avec une augmentation conséquente de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique.

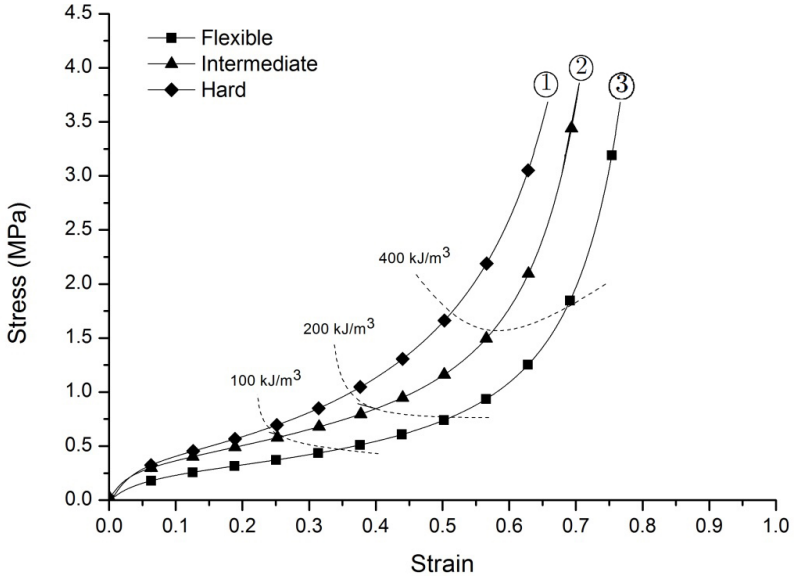


Figure 1.23: Influence du type de résine (même quantité de résine, densité de l'aggloméré et taille des granules de liège) sur la courbe contrainte-déformation en compression de l'aggloméré [23].

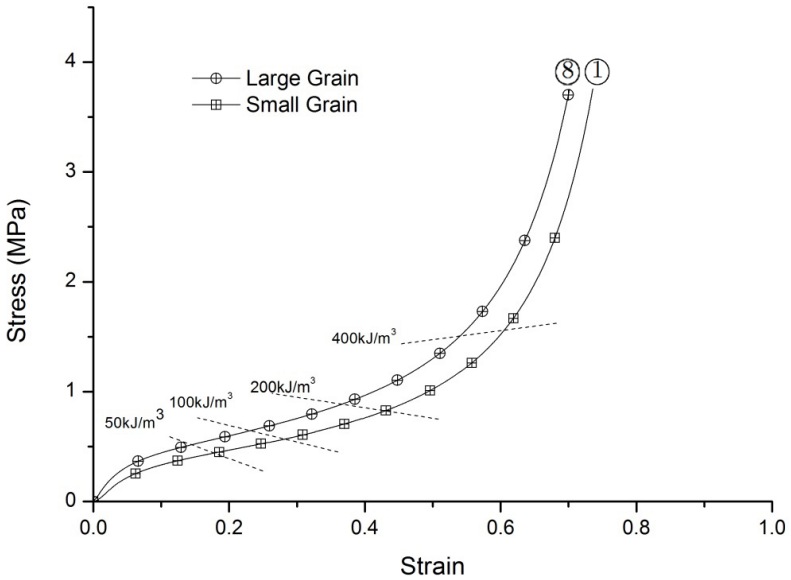


Figure 1.24: Influence de la taille des granules de liège (même densité de l'aggloméré, type et quantité de résine sur la courbe contrainte-déformation en compression de l'aggloméré [23].

Enfin, le type de résine a une influence très faible sur le comportement thermique de l'aggloméré.
Les effets des différents paramètres de conception analysés sur les propriétés thermomécaniques de l'aggloméré sont résumés dans le Tableau 1.8.

1.4 Modélisation des agglomérés de liège

Plusieurs travaux ont été menés afin d'étudier le comportement des agglomérés de liège soumis à différents types de sollicitation. Par contre, un nombre très limité de travaux sur la modélisation des agglomérées est présent en littérature.

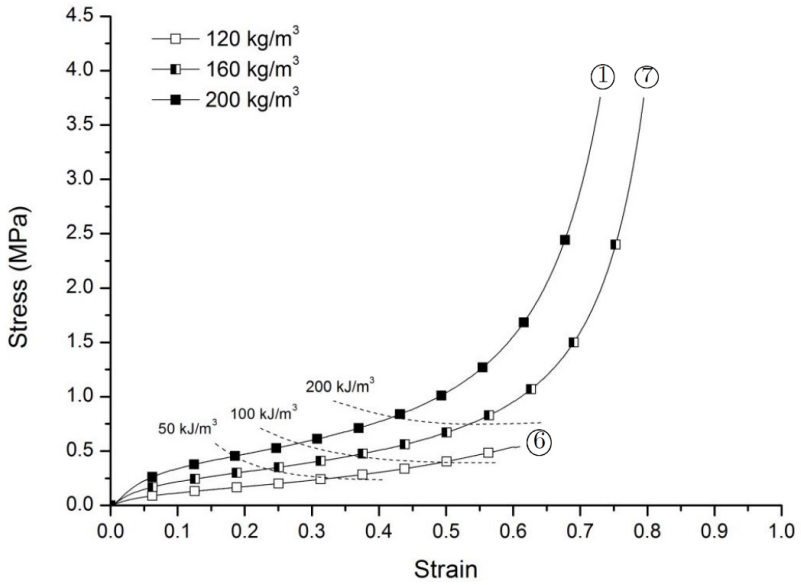


Figure 1.25: Influence de la densité (même taille des granules de liège, type et quantité de résine) sur la courbe contrainte-déformation en compression de l'aggloméré [23].

Effet de / sur	Module d'Young	Déformation maximale	Conductibilité thermique	Chaleur spécifique
Augmentation de la densité de l'aggloméré	↗	↘	↗	↗
Augmentation de la taille des granules	↗	↘	↘	↘
Utilisation d'une résine plus flexible	↘	↗	Faible effet	Faible effet

Tableau 1.8: Effet des paramètres de conception sur les propriétés thermomecaniques des agglomérés de liège.

La réponse de l'aggloméré de liège soumis à un impact a été étudiée par Fernandes *et al.* [38] à l'aide de la méthode EF au moyen de l'outil ABAQUS®. A cette fin, l'aggloméré de liège est modélisé à l'échelle macroscopique (comportement des plaques d'aggloméré décrit macroscopiquement) comme un matériau homogène équivalent. Le modèle matériau Hyperfoam, disponible dans la bibliothèque d'ABAQUS®, est utilisé pour reproduire le comportement en compression de l'aggloméré. Il s'agit d'un modèle pour matériaux hyperélastiques et capables d'atteindre jusqu'à 90% de la déformation en compression. La fonction d'énergie de déformation, qui décrit le modèle Hyperfoam, est la suivante :

$$W = \sum_{n=1}^{N} \frac{2\mu_i}{\alpha_i^2} \left[\lambda_1^{\alpha_i} + \lambda_2^{\alpha_i} + \lambda_3^{\alpha_i} - 3 + \frac{1}{\beta_i}((J)^{-\alpha_i\beta_i} - 1) \right] \tag{1.2}$$

où N est le paramètre qui définit la forme du polynôme (le modèle hyperélastique de Ogden est atteint pour N=6), μ_i, α_i et β_i sont des paramètres du matériau dépendant de la température, λ_1, λ_2 et λ_3 sont les élongations principales et J est le rapport de volume

élastique, avec $J=\lambda_1\lambda_2\lambda_3$ [43].
Les données utilisées pour créer les modèles matériaux ont été récupérées dans la littérature et par des essais de compression et d'impact réalisés par les auteurs eux-mêmes sur un aggloméré générique de liège. Un modèle EF a été créé pour simuler le test de chute guidée; le solveur explicite interne à ABAQUS® a été utilisé, Fig. 1.26. Les résultats numériques montrent une bonne corrélation avec les tests d'impact bien que la déformation permanente ne soit pas prise en compte.

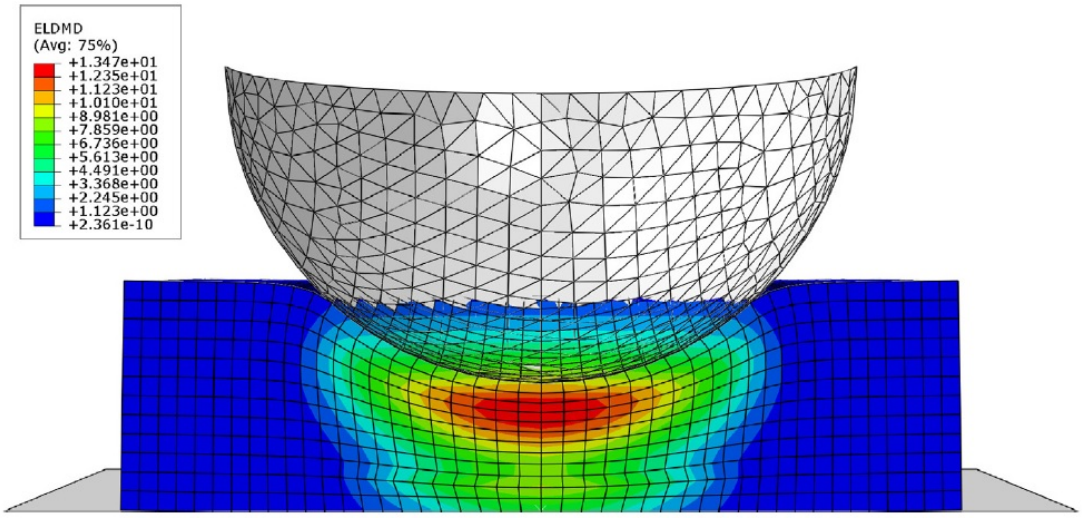


Figure 1.26: Énergie total dissipée due à l'impact en mJ dans les éléments de la section transversale de l'aggloméré de liège [38].

De Albuquerque et De Almeidea [44] ont modélisé le comportement statique et dynamique de l'aggloméré de liège NL20 produit par la société de liège Amorim®. Le comportement du NL20 a été approximé, à l'échelle macroscopique, par le comportement à la fois d'une mousse standard et d'une structure à nid d'abeille à travers l'utilisation de deux modèles matériaux hyperélastiques présents dans l'outil EF LS-DYNA™ : le "Honeycomb model", un modèle matériau orthotrope défini en termes de modules élastiques équivalents qui varient linéairement avec la variation de volume jusqu'aux valeurs du matériau complètement compacté, et le "Low Density Foam model", un modèle matériau pour mousses à basse densité et hautement compressibles. Les résultats numériques, obtenus à l'aide du solveur explicite interne, montrent qu'une bonne approximation du comportement du NL20 en compression est donnée par le modèle basé sur le "Low Density Foam".
Sergi et *et al.* [45] ont étudié la réponse aux impacts de structures sandwich avec une âme en liège aggloméré NL25 produit par la société Amorim®. Dans ce travail, le NL25 a été caractérisé à travers des tests d'impact et un modèle numérique, à l'échelle macroscopique, a été développé. Le code LS-DYNA™ possède plusieurs modèles matériaux intégrés qui peuvent être utilisés pour modéliser une grande variété de mousses. Après avoir essayé différentes solutions, le modèle matériau "Crushable Foam" a été choisi. Ce modèle, basé sur l'hypothèse de coefficient de Poisson nul, permet de modéliser le comportement de mousses isotropes déformables en cas d'impact. La contrainte par rapport à la déformation volumétrique du matériau est la donnée d'entrée du modèle [46]. Une bonne correspondance des résultats numériques avec les résultats expérimentaux a été obtenue comme montré par les Figs. 1.27 et 1.28.
Le comportement dynamique de l'aggloméré de liège et son application dans les

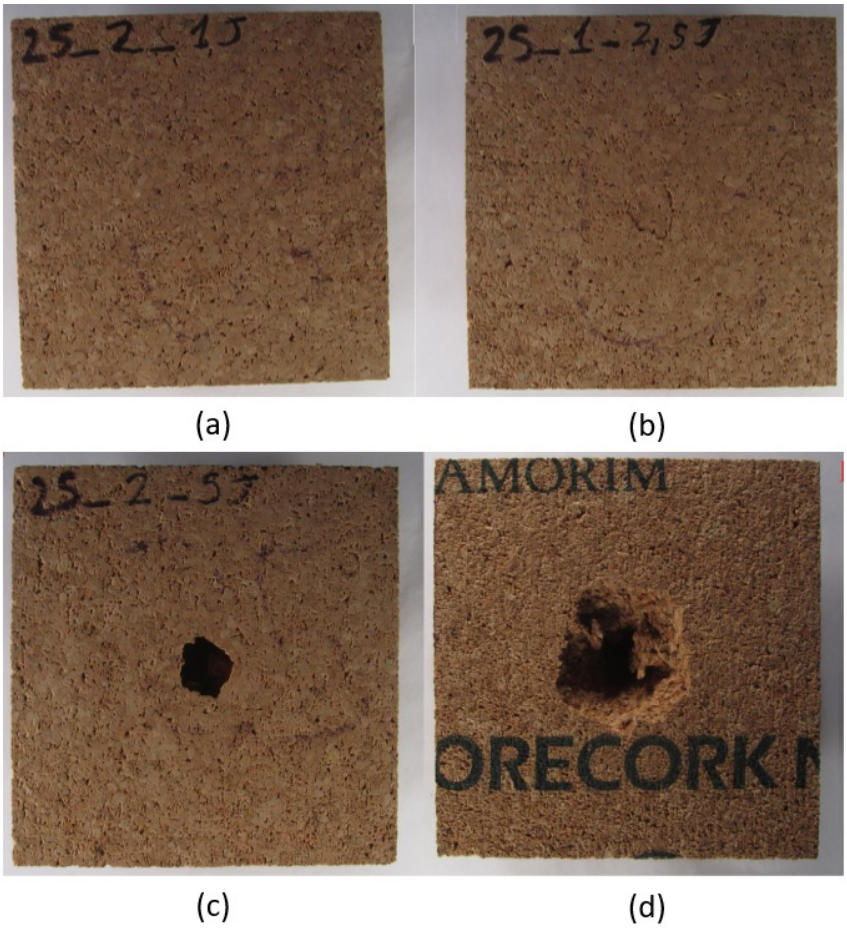


Figure 1.27: Progression de l'endommagement du NL25 pour une simulation numérique d'un test d'impact à 1 J (a) 2.5 J (b) et 5 J avant (c) et derrière (d) l'échantillon [45].

systèmes d'absorption d'énergie ont été étudiés par Gameiro *et al.* [47] aussi. Des tests expérimentaux et des simulations numériques ont été réalisés pour étudier le comportement dynamique sous compression à différentes vitesses de déformation d'un aggloméré constitué par des particules de liège de dimensions variables (entre 0.5 et 2 mm) mélangés avec de la paraffine, latex, huile paraffinique et un adhésif à base de polyuréthane. De plus, afin d'évaluer l'utilisation de l'aggloméré comme matériau capable d'absorber les impacts, les auteurs ont testé, pour différentes vitesses de déformation, le comportement de tubes en aluminium de section circulaire et quadrangulaire avec et sans liège aggloméré à l'interieur. L'aggloméré de liège à été modélisé à l'échelle macroscopique en exploitant le "Honeycomb model" présente dans l'outil LS-DYNA^{TM}. Les résultats obtenus numériquement montrent un accord raisonnable avec les résultats expérimentaux. Paulino *et al.* [48] ont analysé la capacité des agglomérés de liège à absorber les impacts au moyen de l'analyse numérique et, en particulier, dans le cas d'un aggloméré étudié et caractérisé par Gameiro *et al.* [49]. Les données présentes dans [49] ont été utilisées pour créer le modèle matériau de l'aggloméré à l'échelle macroscopique. L'analyse numérique a été réalisée à l'aide du logiciel EF ETA FEMB couplé au solveur explicite LS-DYNA^{TM}. Le "Honeycomb model" a été utilisé pour modéliser le comportement de l'aggloméré de liège [50].

Comme le montre cet état de l'art, plusieurs travaux sur la modélisation de

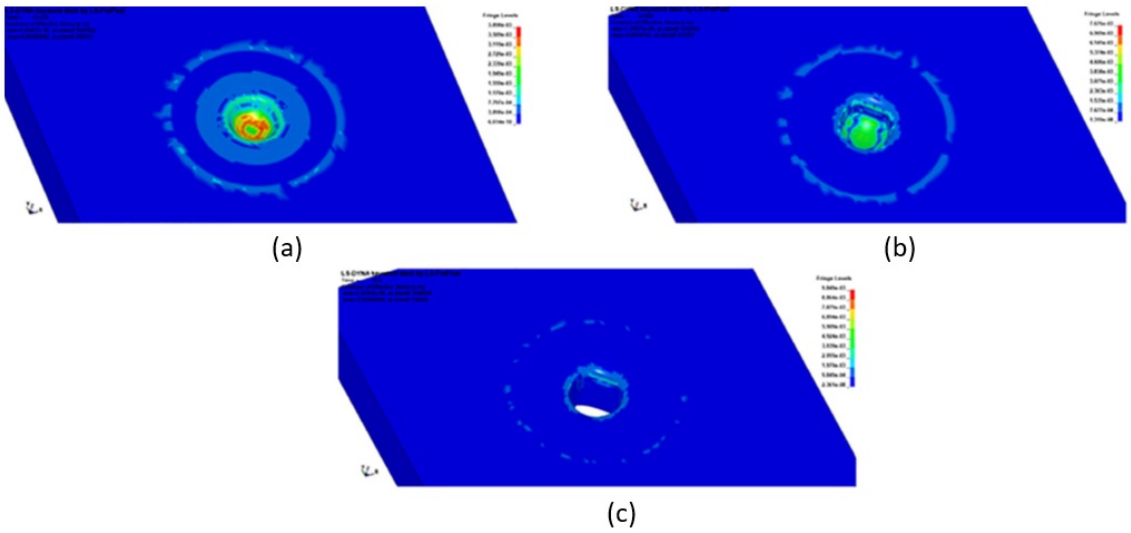


Figure 1.28: Contrainte de von Mises du NL25 pour un test d'impact à 1 J (a) 2.5 J (b) et 5 J (c) [45].

l'aggloméré de liège, à l'échelle macroscopique, ont été présentés dans la littérature notamment dans le cadre de l'évaluation du comportement de l'aggloméré de liège aux impacts. L'aggloméré de liège est modélisé directement à l'échelle macroscopique par l'utilisation de modèles de comportement, notamment adaptés aux structures en nids d'abeille et les mousses, présents au sein des différents outils EF disponibles en commerce. En revanche, à notre connaissance, aucun travail sur le développement de modèles à l'échelle mésoscopique (échelle du granulé) n'a pas été proposé dans le but d'étudier l'influence des paramètres de conception sur les propriétés finales de l'aggloméré. Pour cela, un modèle paramétrique numérique de l'aggloméré et une stratégie d'homogénéisation ont été développés et présentés dans le Chapitre 2.
Ensuite, une stratégie d'homogénéisation, basée sur une approche stochastique, est présentée dans le Chapitre 3 afin d'étudier l'influence de la variabilité des propriétés élastiques dépendantes de la température du liège naturel sur les propriétés finales de l'aggloméré.

1.5 Méthodes d'homogénéisation des composites à base de particules

Les agglomérés de liège présentent différentes échelles de travail, dont l'une est considérée dans ce travail : une échelle mésoscopique de l'aggloméré, vu comme un matériau composé principalement par granules de liège et résine.
Dans le but d'étudier de façon systématique l'influence des différents paramètres de conception sur les propriétés finales de l'aggloméré, des modèles multi-échelle et multi-physiques doivent être développés capables de reproduire de manière sophistiquée les caractéristiques géométriques et physiques typiques de la méso-échelle des composites à base de liège. Différents paramètres de conception (composition, procédé de fabrication, etc.) peuvent être adaptés aux besoins de conception. L'influence des principaux paramètres de conception sur le comportement macroscopique du composite à base de liège est souvent évalué à travers des essais expérimentaux.

Une caractéristique intrinsèque des agglomérés de liège, comme pour tout matériau composite, est l'hétérogénéité. Afin de déduire les propriétés macroscopiques des matériaux hétérogènes (ex. propriétés mécaniques, thermiques, acoustiques, électriques, etc.) à partir de la connaissance des propriétés de chaque constituant et de leur disposition géométrique, il est nécessaire de réaliser une démarche d'homogénéisation.
A partir de la connaissance de certains paramètres de conception, les propriétés élastiques et thermiques des matériaux hétérogènes peuvent être prévues par des méthodes analytiques, expérimentales et numériques d'homogénéisation, chacun montrant un niveau différent de sophistication. Un état de l'art sur les méthodes d'homogénéisation des propriétés mécaniques et thermiques, adaptés au cas des composites à base de particules, est ci-après présenté.

1.5.1 Propriétés mécaniques

Des hypothèses simplificatrices et des équations semi-empiriques sont, souvent, à la base des méthodes analytiques comme, par exemple, les équations d'Einstein [51, 52] qui permettent d'évaluer le module d'Young des composites biphasés (matrice-inclusion) à travers l'utilisation d'une fonction linéaire de la fraction volumique des particules. Par contre, des caractéristiques importantes comme l'effet de la taille des inclusions et de l'interaction entre la matrice et les particules ne sont pas prises en compte. Afin d'améliorer l'estimation du module d'Young, des théories plus élaborées et adaptées au cas spécifique des composites à base de particules ont été développées [53–56]. D'autres théories analytiques, comme les bornes inférieures (RV-LB) et supérieures (RV-UB) de Reuss-Voigt [57,58] et les bornes inférieures (HS-LB) et supérieures (HS-UB) de Hashin-Shtrikman [59], permettent de déterminer des intervalles d'existence des constantes élastiques effectives du composite.
Par la suite, d'autres modèles analytiques plus sophistiqués ont été développés dans le but de prendre en compte la forme des particules sur le comportement macroscopique du composite. Eshelby [60] a résolu le problème d'un inclusion ellipsoïdale élastique incluse dans une matrice élastique de dimension infinie en montrant que la déformation est homogène à l'intérieur de l'inclusion. À partir de cette solution, d'autres méthodes analytiques ont été développées comme le modèle de Mori-Tanaka [61], le Self-Consistent Schème [62] et le modèle de Lielens [63,64]. Toutes ces théories font partie des méthodes d'homogénéisation à champs moyens, dans lesquelles les champs de contrainte et de déformation sont considérés comme homogènes dans chaque phase. C'est pour cette raison que dans tous ces modèles analytiques l'effet des champs localisés (contrainte et déformation) sur le comportement macroscopique n'est pas pris en compte.
À la fin des années '70, la méthode analytique d'homogénéisation asymptotique, basée sur l'évaluation des champs de déformation et contrainte par développement asymptotique, a été présentée par Bensoussan *et al.* [65] et Sanchez-Palencia [66]. De nombreux exemples d'application de la méthode d'homogénéisation asymptotique sont présents en littérature [67–70]. Cette méthode est souvent appliquée dans le cas de géométrie de microstructure simple, avec un comportement élastique-linéaire des composants en petites déformations.
D'autres méthodes d'homogénéisation analytiques, initialement développées pour le cas linéaire, ont été étendues au cas non-linéaire au cours des dernières décennies. Les premiers modèles d'homogénéisation non-linéaire d'une ou plusieurs phases du matériau hétérogène, remontent aux travaux de Talbot et Willis [71] qui ont étendu et généralisé l'approche variationnelle de Hashin-Shtrikman, par l'utilisation d'un "Homogeneous linear comparison medium", pour le cas des composites non-linéaires. Ensuite, Ponte Castañeda [72, 73]

a développé la méthode d'homogénéisation du deuxième ordre basée sur le concept de "Linear comparison composite" (LCC). De nombreuses applications et généralisations du travail de Ponte Castañeda peuvent être trouvées en littérature [74–77].
La méthode d'homogénéisation asymptotique a été étendue également pour le cas de comportement non-linéaire des matériaux, comme montré dans plusieurs travaux présents en littérature [78–81].
En ce qui concerne les méthodes semi-analytiques, Michel et Suquet [82] ont proposé un modèle pour décrire l'écrouissage des composites élasto-plastiques ou élasto-viscoplastiques à partir du modèle de Dvorak [83] qui permet de déterminer le comportement effectif du composite à travers un nombre réduit de variables associées aux champs plastiques à l'échelle microscopique.
Afin de dépasser les limites des modèles analytiques et semi-analytiques, des techniques d'homogénéisation numériques ont été développées. Les modèles EF, selon le degré de raffinement du modèle, peuvent conduire à des solutions plus réalistes et permettre d'analyser l'influence de certains paramètres de conception sur le comportement du composite à un niveau local.
Les méthodes d'homogénéisation numériques, basées sur l'hypothèse qu'un milieu statistiquement homogène peut être défini à partir d'un "volume élémentaire représentatif" (VER), ont montré leur efficacité pour déterminer le comportement effectif des matériaux hétérogènes et en particulier dans le cas des composites à base de particules.
Une fois déterminée la taille du VER, le modèle numérique de la microstructure est créé. Plusieurs méthodes pour la génération de géométries aléatoires, adaptées au cas des composites à base de particules, sont présents en littérature (Dropping & Rolling, Tesselation de Voronoi, etc.). Ensuite, trois différentes conditions aux limites peuvent être imposées : les Conditions aux Limites Cinématiques Uniformes (CLCU), où un déplacement uniforme est appliqué aux limites du VER, les Conditions aux Limites Statiques Uniformes (CLSU), où une traction uniforme est appliquée aux limites du VER, et les Conditions aux Limites Périodiques (CLP) où un déplacement relatif entre tous les points sur les côtés opposés du VER est imposé. Des méthodes basées sur la méthode EF [84–91] ou la Transformée de Fourier Rapide (TFR) [92, 93] sont utilisées, ensuite, pour résoudre numériquement le problème. Les résultats obtenus diffèrent en fonction des conditions aux limites imposées. En particulier, les valeurs des constantes élastiques homogénéisés, obtenues en appliquant les CLCU, ont tendance à être surestimés alors que l'utilisation des CLSU conduit à des valeurs généralement sous-estimées. En revanche, les résultats obtenus grâce à l'application des CLP se situent dans des limites définies par les résultats obtenus grâce à l'utilisation des CLCU et CLSU [94]. Donc, l'utilisation des CLP semble être le meilleur moyen d'évaluer le comportement réel d'un matériau hétérogène. Généralement, la procédure d'homogénéisation numérique est la suivante : une microstructure ou mésostructure artificielle, comprenant des particules pouvant avoir différents types de formes (sphérique, ellipsoïdale, polygonale, etc.) est créée et, par la suite, le problème mécanique est résolu grâce à l'utilisation de la méthode EF ou la TFR.
Plusieurs travaux sont présents dans la littérature sur l'utilisation d'algorithmes pour la création de géométries aléatoires adaptés au cas des composites à base de particules. L'efficacité de chaque algorithme dépend du niveau d'approximation de la micro/mésostructure réelle du composite. Par exemple, l'algorithme de "Dropping & Rolling" est adaptée au cas de particules sphériques, la "Tesselation de Voronoi" aux cas de particules polygonales, etc. [18].
Compte tenu de la nature des composites à base de liège (mésostructure très complexe en termes de géométrie, disposition et propriétés des composants), les méthodes

d'homogénéisation numériques semblent être les plus adaptées pour prévoir les propriétés élastiques finales de l'aggloméré.

1.5.2 Propriétés thermiques

La plupart des méthodes présentes en littérature s'appuient sur des travaux portant sur l'homogénéisation des propriétés mécaniques, adaptées par la suite pour évaluer les propriétés thermiques effectives du composite.
Les bornes inférieures RV-LB et supérieures RV-UB [57,58] et les bornes inférieures HS-LB et supérieures HS-UB [59] de la conductivité thermique effective (CT) d'un composite peuvent être déterminés de manière analogue au cas des propriétés mécaniques. À partir de ces modèles, des techniques d'homogénéisation plus sophistiquées, sont capables de prendre en compte des formes plus réalistes de la géométrie des phases, ont été développées [95–97].
Hatta et Taya [98] ont proposé une approche différente basée sur une méthode d'inclusion équivalente, de maniéré analogue à la théorie d'Eshelby [60] dans le domaine élastique, pour calculer la CT des composites ayant des fibres alignées ou pas, en tenant en compte de l'interaction entre les fibres et leur diverses orientations.
Le modèle de Hatta et Taya a été, par la suite, utilisé par Nan et al. [99] pour évaluer la CT des composites à base de particules avec interface imparfaite au moyen du concept de résistance thermique d'interface. Les résultats analytiques, pour le cas des composites en silice/aluminium, diamant/cordiérite et zns/diamant sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. La même procédure a été utilisée pour évaluer le CT dans le cas de composites à base de nanotubes [100].
Tous ces modèles analytiques ne tiennent pas compte de l'influence des caractéristiques géométriques locales sur le comportement macroscopique. Pour dépasser les limites des modèles analytiques, des techniques d'homogénéisation numérique ont été développées. Dans le travail de Islam and Pramila [101], la CT de la cellule unitaire (CU), pour le cas de composites renforcés par des fibres de distribution carrée, a été évaluée par la méthode EF.
Noor et Shah [102] ont développé différents modèles EF de CU pour le cas de composites renforcés par des fibres afin de comparer les résultats numériques avec ceux obtenus par certaines méthodes analytiques.
Différentes méthodes analytiques et semi-empiriques ont été développées pour évaluer la dilatation thermique effective (DT) pour plusieurs types de matériau composite. En analogie avec le cas de la conductivité thermique, les bornes inférieures RV-LB et supérieures RV-UB [57, 58] et les bornes inférieures HS-LB et supérieures HS-UB [59] de la DT peuvent être déterminées. Turner [103] a développé plus tard un modèle capable de prendre en compte l'interaction mécanique entre les phases à travers une expression qui permet d'évaluer la borne inférieure de la DT en fonction du module de compressibilité effectif du composite. Levin [104] a développé un modèle capable de déterminer la borne supérieure et inférieure de la DT pour un matériau constitué de phases isotropes. Par la suite, Rosen et Hashin [105] ont étendu le modèle de Levin au cas des matériaux anisotropes constitués de phases avec comportement anisotrope. Le modèle de Schapery [106], basé sur les principes de l'énergie élastique, permet de déterminer les bornes de la DT pour le cas de matériaux hétérogènes anisotropes constitués de phases avec comportement isotrope. Pour le cas de mélanges composés de plusieurs phases, des bords inférieurs et supérieurs de la DT peuvent être déterminés grâce à la formule de Budiansky [107] basée sur le Self-Consistent Schème [62]. Un modèle pour la determination de la DT, dans le cas de composites avec comportement isotrope-transverse, a été dérivé par Chamberlain [108].
Dans le domaine des méthodes d'homogénéisation numérique, deux principales techniques

sont présentes en littérature basées sur la méthode EF. Bowles *et al.* [109] ont développé une technique numérique pour évaluer la DT d'un composite à travers la réalisation d'une analyse statique, par méthode EF, basée sur l'application au VER du composite d'un champs de température uniforme et de conditions aux limites spécifiques afin d'obtenir une déformation d'extension pure du VER.
Dans le cas de la DT déterminée par la méthode d'homogénéisation de Ashby *et al.* [110], des conditions aux limites périodiques spécifiques et un champs de température uniforme sont appliqués au VER du composite afin d'obtenir, après analyse statique par méthode EF, un champs de déformation égal à zero. Les deux procédures susmentionnées sont décrites en détail au Chapitre 2.
Comme dans le cas de la détermination des propriétés élastiques, dans ce mémoire, une approche numérique sera utilisée pour déterminer la CT et la DT de l'aggloméré de liège.

1.6 Remarques générales

Cette étude bibliographique a permis de décrire l'état de l'art sur l'influence des principaux paramètres de conception sur les propriétés thermomécaniques de l'aggloméré et des principales méthodes d'homogénéisation capables de prédire les propriétés thermoélastiques des composites à base de particules. Dans le but d'avoir une vision complète du matériau, la première partie de l'état de l'art a été dédiée à une étude bibliographique sur la production, sur les propriétés et les usages du liège, notamment sous forme d'aggloméré.
Du point de vue de la conception du matériau, généralement, le composite à base de liège est réalisé au moyen d'une approche empirique basée sur la méthode "essai-erreur". Des modèles sophistiqués multi-échelle et multi-physiques, pouvant représenter une aide importante à la conception des agglomérés à base de liège par une approche systématique, sont absents en littérature.
La détermination des propriétés thermomécaniques de matériaux hétérogènes peut être réalisée par des méthodes d'homogénéisation. Compte tenu de la nature des agglomérés de liège (mésostructure très complexe en termes de géométrie, disposition et propriétés des composants), les méthodes d'homogénéisation numériques semblent les plus adaptées pour prévoir les propriétés finales de l'aggloméré.
Le liège montre une grande variabilité de ses propriétés. Concernant les propriétés mécaniques, son comportement dans le domaine élastique-linéaire est très variable. Par conséquent, la variabilité est un facteur très important à prendre en considération notamment pendant la phase de conception de l'aggloméré.
Dans les travaux présentés dans les chapitres suivants, des modèles spécifiques ont été développés dans l'intention de surmonter certaines limitations de la littérature avec l'objectif de donner une contribution en vue du développement de méthodes de conception, des composites à base de liège, basées sur une approche systématique.
Notamment les Chapitres suivants se focalisent sur :

- Chapitre 2 : développement d'un modèle numérique 2D à l'échelle mésoscopique de l'aggloméré pour déterminer les propriétés thermoélastiques équivalentes;
- Chapitre 3 : développement d'une stratégie numérique, basée sur une approche stochastique, pour prédire les propriétés élastiques, à l'échelle mésoscopique de l'aggloméré, dépendent de la température et sous incertitude;
- Chapitre 4 : développement d'une stratégie de modélisation pour prédire l'état de précontrainte des agglomérés de liège fabriqués au moyen du procédé de moulage

par compression.

Chapitre 2

Homogénéisation des propriétés thermoélastiques de l'aggloméré

L'article *Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates*, présenté dans ce chapitre, a été publié dans la revue internationale *Journal of Reinforced Plastics and Composites*. Il traite du développement d'un modèle numérique 2D à l'échelle mésoscopique de l'aggloméré pour déterminer les propriétés thermoélastiques équivalentes. Ce modèle est basé, d'une part, sur un schéma général d'homogénéisation numérique et, d'autre part, sur une version améliorée de l'algorithme de génération de micro/méso-structure de type tessellation de Voronoi (TV).
Le comportement thermoélastique macroscopique de l'aggloméré, en omettant les effets de la microstructure en nid d'abeille du liège, dépend de différents paramètres définissant son VER : l'orientation spatiale et la forme des granules, l'anisotropie du comportement élastique du liège, les propriétés de la matrice et du liège ainsi que leur fraction volumique. En particulier, des algorithmes *ad-hoc* ont été développés pour prendre en compte de la disposition géométrique et de l'orientation du repère matériel aléatoire de chaque particule de liège au sein de la mésostructure.
Il s'agit d'un tout premier travail de modélisation des composites à base de liège dont l'objectif principal est le développement d'un algorithme de génération d'une mésostructure semi-réaliste de l'aggloméré. Certaines caractéristiques du matériau ont été négligées, comme le comportement hyperélastique du liège, l'état de pré-contrainte du au procédé de fabrication et l'interface imparfaite entre les particules et la matrice.
Une analyse de convergence par rapport aux propriétés élastiques équivalentes, illustrée dans l'annexe A, a été réalisée sur la taille du maillage et du VER. Dans le but de prouver l'efficacité de la stratégie de modélisation proposée, des comparaisons avec certains résultats expérimentaux tirés de la littérature ont été réalisées. En fait, les résultats numériques sont en bon accord avec ceux expérimentaux notamment lorsqu'une rotation aléatoire de la particule et du repère matériel est prise en compte.
En outre, le degré de symétrie de la matrice de rigidité du matériau homogénéisé a été analysé, en montrant que, à l'échelle macroscopique, l'aggloméré présente une symétrie élastique cubique et donc que, contrairement aux matériaux isotropes, le module de cisaillement est indépendant du module d'Young et du coefficient de Poisson.

ERRATUM : Les valeurs de la densité du maillage, rapportées dans l'article, sont en éléments/mm^2 et pas en mm^{-2}.

Check for updates

Original article

JOURNAL OF REINFORCED PLASTICS & COMPOSITES

Journal of Reinforced Plastics and Composites
2019, Vol. 38(16) 760–776
© The Author(s) 2019
Article reuse guidelines:
sagepub.com/journals-permissions
DOI: 10.1177/0731684419846991
journals.sagepub.com/home/jrp
SAGE

Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates

Marco Delucia[1], Anita Catapano[2], Marco Montemurro[1] and Jérôme Pailhès[1]

Abstract

In this paper, a general numerical homogenisation scheme coupled with an efficient modelling strategy for predicting the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates is presented. In order to generate a realistic representation of the geometry and distribution of particles for the representative volume element of the agglomerate at the mesoscopic scale, a general parametric model based on the Voronoi's tesselation has been developed. However, the classical algorithm for Voronoi's tesselation has been enhanced by adding a full parametrisation of the representative volume element. The grains composing the representative volume element are generated by considering the full set of design variables involved at this scale, i.e. the material properties of the constitutive phases (grains and matrix) and the main geometric parameters related to the grain (volume fraction, average diameter, geometric and material orientations). Numerical results show that the macroscopic effective thermoelastic properties of the cork-based agglomerate are strongly affected by the previous parameters in perfect agreement with experimental results available in literature.

Keywords

Cork-based composites, Voronoi's tessellation, homogenisation, elastic properties, thermal properties

Introduction

The research on high-performance materials plays a role of primary importance for many industrial applications. Nowadays, society is aware of environmental issues and themes as sustainability and recyclability are commonly discussed in industry and academia. The general aim is to reduce the environmental impact due to human activities. One of the main objectives is replacing synthetic and non-renewable materials used for specific applications by natural and renewable materials with similar or even better properties. In the last few decades, among natural, renewable and biodegradable materials, cork has attracted the attention of many researchers and companies thanks to its remarkable properties.

Cork is one of the lightest wood with excellent thermal and acoustic insulation capability suitable to be exploited in many existing applications from construction to aerospace field.

Cork is extracted from the outer bark of *Quercus Suber L.* and exhibits a honeycomb-like microstructure, as shown in Figures 1 and 2, composed of closed cells filled with an air-like gas which represents up the 85%–90% of the total volume.[2]

Thanks to its low density, which varies between 120 and 240 kg/m^3, and chemical composition (the suberin and the lignin are the two main components),[3–5] it is a potential candidate for lightweight applications, impermeable to gases and liquids with outstanding acoustic and thermal insulation properties. Furthermore, as a consequence of its viscoelastic behaviour and compressibility, it shows a good damping capability.[6,7] The mechanical behaviour of cork can be considered roughly transversely isotropic.[6] The high variability of

[1]Arts et Métiers ParisTech, I2M CNRS UMR 5295, Talence, France
[2]Bordeaux INP, Université de Bordeaux, I2M CNRS UMR 5295, Talence, France

Corresponding authors:
Marco Montemurro, Arts et Métiers ParisTech, I2M CNRS UMR 5295, F-33400 Talence, France.
Email: marco.montemurro@ensam.eu
Anita Catapano, Bordeaux INP, Université de Bordeaux, I2M CNRS UMR 5295, F-33400 Talence, France.
Email: anita.catapano@bordeaux-inp.fr

density, porosity and chemical composition in the cork planks (which are strongly affected by the geographical location of cork production) explains the natural variability of its macroscopic mechanical properties.[3,8] In particular, density and porosity are the main parameters influencing the mechanical behaviour of cork. General properties of cork are summarized in Table 1. A review on cork and its application can be found in the study by Pereira.[2]

Cork products can be classified in two main categories: natural cork and cork-based agglomerates or composites. The first category does not introduce additional process besides elaboration, cutting and finishing. Instead, cork-based composites are usually obtained by the compression moulding process in which a mixture of cork granules and a polymeric binder (polyurethanes resins, phenol-formaldehyde resins, etc.) is compressed in a mould cavity by a hydraulic press (the pressure level depends on the final density sought). Afterwards, the mould is placed in an oven at temperatures between 100°C and 150°C for a period from 1 to 20 h to guarantee a convenient curing stage.[2] Next, the agglomerate is unmoulded and subject to cooling/stabilisation. The result of this process is the cork-based agglomerate in the form of parallelepipedic blocks that subsequently are laminated to get the desired dimensions.[2]

Cork-based composites are used in several applications such as, for example, cork stoppers, floor coverings and heat engine seals. They can also be utilised in multilayer plates (e.g. the core of sandwich panels). Cork-based composites exhibit a viscoelastoplastic behaviour similar to that of the natural cork.[2,13,14] The typical compressive stress–strain curve shows a behaviour common to hyper-elastic materials. Generally, for small values of the strain, cells tend to bend elastically through a process fully reversible as illustrated in Figure 3.

Table 1. General properties of cork.

Property	Value
Density (kg/m^3)	120–180 (amadia)[9] 160–240 (virgin)[9]
Thermal conductivity (W/mK)	0.045 (cork)[10] 0.025 (air)[10] 0.2 (cork cell walls)[10]
Electrical conductivity (S/m)	1.2×10^{-10} (25°C)[11] 1.67×10^{-13} (50°C)[11]
Acoustic resistivity (kg/m^{2}s)	1.2×10^5 [12]
Specific heat (J/kgK)	350[10]

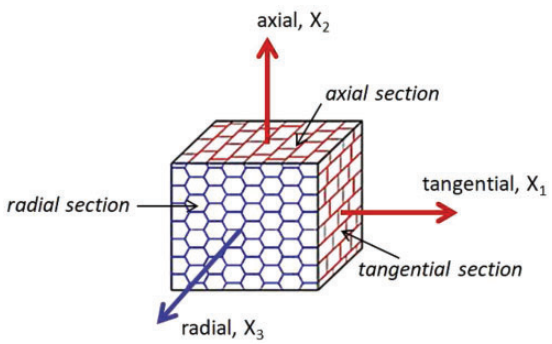


Figure 1. Schematic representation of the honeycomb microstructure and reference frame of cork.

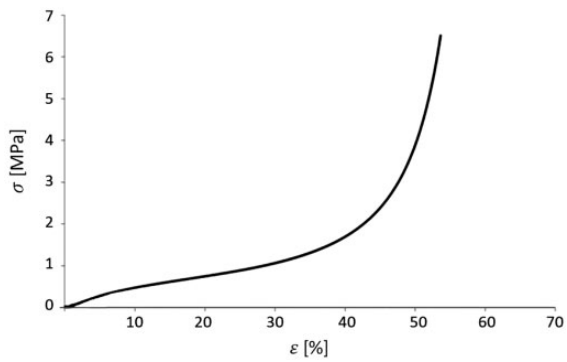


Figure 3. Stress–strain curve in compression for the cork-based composite AC216.[13]

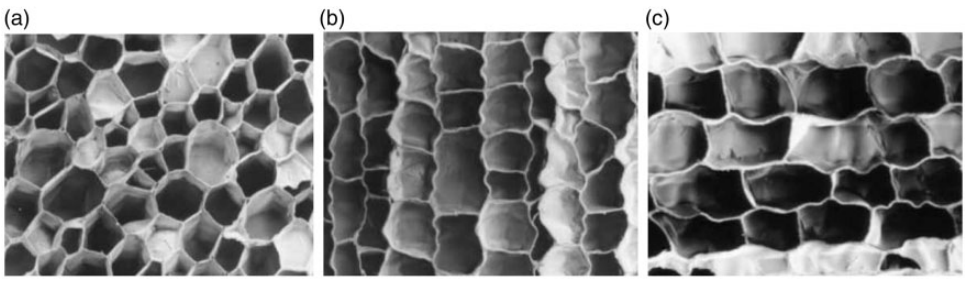


Figure 2. Microstructure of the cork observed by scanning electron microscopy: radial (a), axial (b) and tangential section (c), the pictures are taken from the study by Pereira.[1]

Table 2. Properties of some cork-based composites available in literature.

Property	13	13	23	14
Density (kg/m^3)	157	216	272	580
Range of grain (mm)	2–4	2–4	Small grains	1–3
Binder	Polyurethane	Polyurethane	Epoxy	Epoxy
Binder volume fraction	N/A	N/A	N/A	35
Young's modulus (MPa)	4	6	N/A	180
Thermal conductivity (W/mK)	N/A	N/A	0.047	N/A

On the other hand, the tensile behaviour of cork-based composites is quite different from the compression one. In particular, a typical tensile stress–strain curve shows a behaviour similar to that of cellular materials.[15] Furthermore, cork-based agglomerates exhibit a thermal insulation capability which is very close to that of the natural cork. In fact, the cellular microstructure of cork, composed of a large amount of air-like gas, allows having an agglomerate with a low thermal conductivity that can be exploited for several applications. An exhaustive review on cork-based composites and their applications can be found in the study by Gil.[16]

The thermomechanical properties of cork-based composites depend on the main design and process parameters as the quality, the density, the size and the fraction of cork particles in the mixture, the type and the quantity of polymeric binder, the manufacturing process (pressure and temperature) and the overall packing density.[13,17–22] The main properties of some cork-based agglomerates available in literature are reported in Table 2.

Some studies have been conducted to experimentally investigate the influence of the main design parameters on the properties of cork-based composites.

Jardin et al.[13] have shown, by testing different types of cork-based composites, that the overall density, the grain size and the binder type have a clear influence on the mechanical behaviour of the composite. In particular, the higher the relative density of the agglomerate, the higher the Young's modulus.

Castro et al.[23] studied the opportunity to exploit cork-based composites as a core material for sandwich components. Bending tests on different core materials, as synthetic foams, commercial cork-based agglomerates and cork-epoxy agglomerates, have shown that by adjusting parameters such as the cork grains average size, type of resin and density, it is possible to control the performances of the sandwich components depending on the considered application. In particular, cork-epoxy agglomerates, compared with other core materials, are characterised by a higher shear stress limit. Thermal conductivity tests have revealed that cork-epoxy agglomerates show good thermal insulation properties, similar to synthetic foams. Moreover, the lower the relative density, the lower the thermal conductivity of the agglomerate.

Santos et al.[21,22] have designed, produced, tested and compared different cork-based composites in order to obtain a suitable combination of thermal and mechanical properties. In particular, they compared composites with same density, type and percentage of binder but different grain size in order to assess the influence of this last parameter. Results show that it is possible to tailor mechanical properties by changing design parameters, e.g. the type of binder, in order to delay the densification stage or to have a larger plateau with higher deformations. Furthermore, experimental results concerning thermal conductivity and specific heat show that the thermal behaviour of cork-based composites is not considerably influenced by some parameters as the grain size, room temperature, type and percentage of resin. Conversely, density of cork-based composites strongly affects the thermal properties.

As it clearly appears from this non-exhaustive literature survey (and also to the best of the authors' knowledge), the influence of the main design and process parameters of cork-based composites on it's macroscopic behaviour is often evaluated through experimental tests. In this background, no systematic approach which aims at studying the influence of the full set of the main design and process parameters involved at different scales on the macroscopic thermal and elastic behaviours of cork-based agglomerates has been proposed yet. The aim of the present work is to propose a general (and efficient) multi-scale numerical homogenisation procedure capable of determining the effective (or apparent) thermal and elastic properties of cork-based agglomerates. The goal is the determination of the equivalent macroscopic behaviour of the cork-based composite starting from the behaviour and arrangement of its constituents in order to replace the real heterogeneous material with a fictitious homogeneous medium.

The strategy proposed in this work is focused on the transition from mesoscopic scale (i.e. the scale of the components of the cork agglomerate, the cork particles

and the matrix) to the macroscopic one. The macroscopic thermal and elastic behaviours depend upon different parameters defining the representative volume element (RVE) of the agglomerate: grain orientation, grain shape, grain anisotropy, matrix material properties and volume fraction as well as the properties of the interface between grains and matrix.

To this purpose, a general finite element (FE) model of the agglomerate RVE integrating all the previous parameters is proposed in this work. The modelling strategy relies, on the one hand, on a generalisation of the Voronoi's tesselation (VT) algorithm[24] and, on the other hand, on the strain energy homogenisation technique of periodic media presented in the previous studies.[25–30] In particular, as far as the VT algorithm is concerned, two affine transformations (i.e. a homothety followed by a local rotation of each grain) have been added in order to closely reproduce the cork-based composite RVE structure at the mesoscopic scale.

The RVE of the cork-based agglomerate is generated in order to take into account the randomness of both the grain geometric and material frame orientations. The sensitivity analysis of the thermal and elastic properties to both the matrix volume fraction and the cork particle size variability has been conducted. In addition, the effectiveness of the proposed modelling strategy is proven through a meaningful comparison with experimental data taken from the literature.[14] Furthermore, concerning elastic properties, the degree of anisotropy of the equivalent homogeneous material has been evaluated through the numerical approach presented in the study by Catapano and Jumel.[26]

The paper is organized as follows: the description of the problem and the FE-based homogenisation method are presented in "Homogenisation of mechanical and thermal properties" section. The parametric model for the generation of the meso-structure and the related two-dimensional (2D) FE model for numerical homogenisation are illustrated in "Semi-realistic FE models for numerical homogenisation" section. The sensitivity analysis is detailed in "Numerical study" section. The comparison between numerical and experimental results is presented in "Case study" section. Finally, "Conclusions and perspectives" section ends the paper.

Homogenisation of mechanical and thermal properties

Several analytical, experimental and numerical methods can be found in literature for the prediction of elastic and thermal properties of heterogeneous materials, each one showing a different level of sophistication.

Analytical models are often based on simplifying assumptions hypotheses and semi-empirical equations. For instance, the Einstein's equations[31,32] predict the Young's modulus of particulate-polymers composites using a linear function of the particle volume fraction (V_p) without considering the effect of the inclusions size and the interaction between the matrix and the particles. In order to improve the estimation of the Young's modulus, more elaborated theories have been developed.[33–36] Among analytical theories for homogenisation of elastic properties of composites, the Reuss-Voigt's Lower (RV-LB) and Upper (RV-UB) Bounds[37,38] and the Hashin-Shtrikman Lower (HS-LB) and Upper (HS-UB) Bounds[39] have been developed to determine a range of existence of the elastic moduli, rather than a single value. Successively, these models have been adapted for determining also the thermal conductivity of composites.[40] However, the previous models can predict only the influence of the material properties of the constitutive phases and of the inclusions volume fraction on the final macroscopic behaviour of the composite, without integrating the effect of other relevant variables like the shape of the inclusions.

More sophisticated models and theories such as the Eshelby's model,[41] the Mori-Tanaka model,[42] the Self-Consistent Scheme[43] and the Lielens' model[44,45] are able to take into account the influence of the shape of the particles on the macroscopic behaviour of the composite. Many analytical models have been also developed for the prediction of thermal expansion coefficients of composites, each of one with a different degree of complexity as the model of Schapery (SC),[46] Chamberlain,[47] Chamis (CH),[48] Rosen and Hashin.[49] However, all these analytical models are characterised by a common strong limitation: the effect of localised fields (stress, strain or temperature) on the macroscopic behaviour is not taken into account.

In order to go beyond the limitations of the analytical models, numerical homogenisation techniques have been developed. FE-based models are very general and, depending on the degree of refinement of the model, they can lead to more realistic solutions. Furthermore, they can be a valid support for experimental tests. Indeed, numerical results can orient the types of experimental tests to be conducted and inversely, the experimental results can validate the numerical model, thus reducing the number of tests, with a consequent reduction of time and costs.

In this work, a general FE model of the cork-based composite RVE is developed. The aim of the proposed modelling strategy is to closely reproduce the real meso-structure of the agglomerate. Therefore, a suitable parametric FE model integrating the main features of the cork-based composite has been conceived.

In particular, the FE model of the RVE has been parametrised in terms of the particles shape and size, particles (random) orientation, particles arrangement within the matrix and particles anisotropy as well. It is noteworthy that cork-based composites show a highly random meso-structure, especially in terms of the geometrical arrangement of the particles as well as their shape and orientations (both geometrical and material). Therefore, cork-based composites do not show a periodic meso-structure. In this work, the homogenisation method is applied on an RVE sufficiently large in order to be representative of the macroscopic behaviour of the real composite. Moreover, no hypotheses are made on the type of elastic symmetry of the resulting homogenised material. Indeed, the kind and degree of elastic symmetry (e.g. isotropic, cubic, etc.) will be determined analysing, at a later stage, the components of the stiffness tensor of the homogenised material.

The homogenisation procedure is applied to a 2D FE model of the agglomerate RVE under plane strain assumption. In this framework, the effective elastic and thermal properties of the cork-based composite are determined under the following hypotheses:

- linear elastic and thermal behaviours for the material of the constitutive phases and;
- perfect bonding for the wall-to-wall contact between matrix and particles.

FE-based homogenisation of elastic properties

The effective properties of the cork-based composite are determined using the strain energy homogenisation technique of periodic media.[25,26] This method is based on the assumption that both the RVE of the periodic heterogeneous structure and the corresponding volume of the equivalent homogeneous medium undergo the same deformation having, hence, the same strain energy.

Using Voigt's notation, for plane strain hypothesis ($\varepsilon_z = \varepsilon_r = \varepsilon_q = 0$), the generalised Hooke's law of the homogeneous medium is

$$\begin{Bmatrix} \bar{\varepsilon}_x \\ \bar{\varepsilon}_y \\ \bar{\varepsilon}_s \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} B_{xx} & B_{yx} & B_{xs} \\ B_{yx} & B_{yy} & B_{ys} \\ B_{sx} & B_{sy} & B_{ss} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \bar{\sigma}_x \\ \bar{\sigma}_y \\ \bar{\sigma}_s \end{Bmatrix} \tag{1}$$

where $\bar{\varepsilon}$ and $\bar{\sigma}$ are, respectively, the averaged strain and stress vectors referred to the equivalent continuum after homogenisation of the RVE. The components of the compliance matrix $\mathbf{B}$ are expressed under the plane strain field assumption.[50]

The converse relation of equation (1) is

$$\begin{Bmatrix} \bar{\sigma}_x \\ \bar{\sigma}_y \\ \bar{\sigma}_s \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} Q_{xx} & Q_{xy} & Q_{xs} \\ Q_{yx} & Q_{yy} & Q_{ys} \\ Q_{sx} & Q_{sy} & Q_{ss} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \bar{\varepsilon}_x \\ \bar{\varepsilon}_y \\ \bar{\varepsilon}_s \end{Bmatrix} \tag{2}$$

where $\mathbf{Q}$ is the in-plane stiffness matrix under plane strain assumption, with $\mathbf{B} = \mathbf{Q}^{-1}$. In order to determine the in-plane stiffness matrix of the homogeneous material at the upper scale, a set of periodic boundary conditions (PBCs) must be applied to the RVE. This can be achieved by imposing suitable constraint equations on each couple of homologous nodes belonging to the opposite faces of the RVE.

Consider a square RVE of side L, as illustrated in Figure 4: the set of PBCs can be expressed as

$$\begin{aligned} \mathbf{u}(0,y) - \mathbf{u}(L,y) &= u_x \mathbf{e}_x \\ \mathbf{u}(x,0) - \mathbf{u}(x,L) &= u_y \mathbf{e}_y \end{aligned} \tag{3}$$

where $\mathbf{u}$ is the displacement vector, while $\mathbf{e}_x$ and $\mathbf{e}_y$ are the unit vectors along x and y axes, respectively. u_x and u_y are arbitrary displacements imposed on the RVE.

Therefore, the components of matrix $\mathbf{Q}$ can be determined column-wise by applying the arbitrary displacements listed in Table 3. These boundary conditions (BCs) correspond to three static analyses wherein the strain tensor is characterised by only one component at time different from zero.

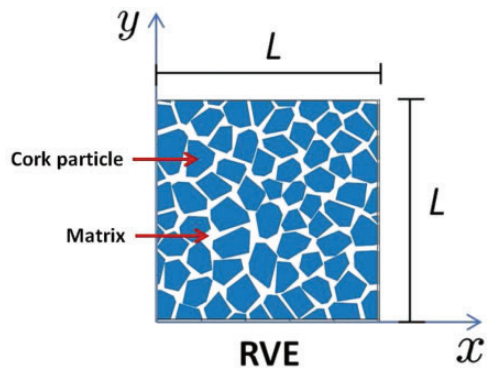


Figure 4. Reference frame of the RVE.

Table 3. Boundary conditions for the FE model of the RVE.

First load case	Second load case	Third load case
$u_x = U_x$ $u_y = 0$	$u_x = 0$ $u_y = U_y$	$u_x = U_x/2$ $u_y = U_y/2$

FE: finite element; RVE: representative volume element.

The components of **Q** can be determined from the average strain and stress fields inside the RVE due to the application of PBCs

$$Q_{\alpha\beta} = \frac{\bar{\sigma}_\alpha}{\bar{\varepsilon}_\beta}, \text{ with } \alpha, \beta = x, y, s \text{ and } \varepsilon_\gamma = 0, \text{ with } \gamma = x, y, s, \gamma \neq \beta \tag{4}$$

In the previous equation, the average stress field is computed as

$$\bar{\sigma}_\alpha = \frac{1}{A_{\text{RVE}}} \int_{A_{\text{RVE}}} \sigma_\alpha(x, y)\, \mathrm{d}A,\ \alpha = x, y, s, \tag{5}$$

where ARVE is the area of the RVE; whilst the average strain components can be expressed as

$$\bar{\varepsilon}_x = \frac{U_x}{L}, \quad \bar{\varepsilon}_y = \frac{U_y}{L}, \quad \bar{\varepsilon}_s = \frac{U_x + U_y}{L} \tag{6}$$

where U_x and U_y are the imposed displacements listed in Table 3.

The flowchart of the numerical homogenisation procedure adopted in this work is illustrated in Figure 5. The entire computational procedure is driven by a Python script interfaced with the FE model built into the ANSYS environment. The user sets the input data concerning the composition of the cork-based composite (i.e. particle average size, particles volume fraction, etc.) as well as the mechanical and thermal properties of its components (elastic constants, density, thermal conductivity and expansion coefficients).

Once the RVE geometry is generated in Python, all of the geometric and material data are passed to the ANSYS code in order to build the FE-model of the RVE and run the numerical homogenisation analyses. The results are then post-processed in Python.

FE-based homogenisation of thermal properties

Analogously to the strain energy homogenisation technique, also effective thermal conductivity and expansion coefficients can be evaluated through the numerical approaches based on the FE method.[51,52]

Concerning thermal conductivity coefficients of the composite, once the FE model of the RVE is generated, the following PBCs must be applied to the opposite faces of the FE model

$$T(x, 0) - T(x, L) = \nabla T \cdot \mathbf{e}_x L,\ T(0, y) - T(L,) = \nabla T \cdot \mathbf{e}_y L \tag{7}$$

where ∇T represents the arbitrary temperature gradient to be imposed to the RVE.

Then, two steady-state thermal analyses are performed on the FE model, by considering the BCs listed in Table 4.

Once the steady-state thermal analyses are solved, the components of the average heat flux per unit line can be determined as

$$\bar{q}_\alpha = \frac{1}{A_{\text{RVE}}} \int_{A_{\text{RVE}}} q_\alpha(x, y)\, \mathrm{d}A,\ \alpha = x, y \tag{8}$$

The effective thermal conductivity tensor components $K_{\alpha\beta}$ can be calculated column-wise (tensor notation) as follows

$$K_{\alpha\beta} = \frac{\bar{q}_\alpha}{\nabla T \cdot \mathbf{e}_\beta}, \text{ with } \alpha, \beta = x, y \tag{9}$$

The effective coefficients of thermal expansion (CTEs) can be evaluated through two different methods. In the first one (ME1),[53] only a static analysis is necessary. A uniform temperature field ΔT is applied to

Table 4. Thermal BCs for the FE model of the RVE.

First load case	Second load case
$\nabla T = \left(\frac{\Delta T}{L}, 0\right)$	$\nabla T = \left(0, \frac{\Delta T}{L}\right)$

BC: boundary condition; FE: finite element; RVE: representative volume element.

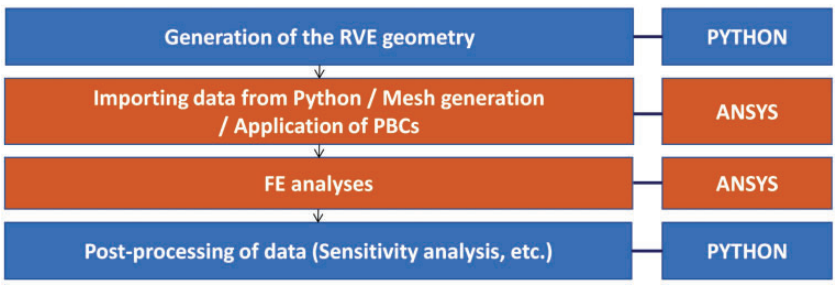


Figure 5. Flowchart of the numerical homogenisation procedure. RVE: representative volume element; PBCs: periodic boundary conditions; FE: finite element.

the entire RVE together with the following BCs (as illustrated in Figure 6):

$$\begin{aligned} &\mathbf{u}(x,0)\cdot\mathbf{e}_y = 0,\\ &\mathbf{u}(0,y)\cdot\mathbf{e}_x = 0,\\ &(\mathbf{u}(0,y)-\mathbf{u}(L,y))\cdot\mathbf{e}_y = 0\\ &(\mathbf{u}(x,0)-\mathbf{u}(x,L))\cdot\mathbf{e}_x = 0 \end{aligned} \tag{10}$$

The previous BCs are imposed in order to obtain a pure extension deformation of the RVE. Then, the effective CTEs α_{ij} (tensor notation) can be calculated as follows

$$\alpha_{ij} = \frac{1}{\Delta T}\bar{\varepsilon}_{ij}, \quad \text{with} \quad i = x, y. \tag{11}$$

In the second method (ME2),[52] a uniform temperature field $\Delta T = 1°\text{C}$ is applied to the entire FE model along with the following PBCs

$$\begin{aligned} &\mathbf{u}(0,y)-\mathbf{u}(L,y) = 0\\ &\mathbf{u}(x,0)-\mathbf{u}(x,L) = 0 \end{aligned} \tag{12}$$

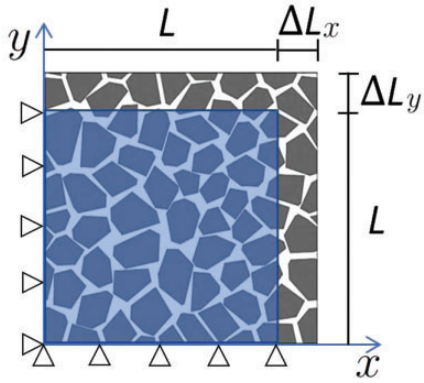


Figure 6. RVE BCs and deformation due to thermal expansion, ME1.

The PBCs of equation (12) generate a total strain field equal to zero. Therefore, using the Duhamel-Neumann thermo-elastic law, the equivalent CTEs of the resulting homogeneous medium can be expressed as follows (Voigt's Notation)

$$\alpha_i = -\frac{1}{\Delta T}B_{ij}\bar{\sigma}_j, \quad \text{with} \quad i,j = x, y, s \tag{13}$$

Semi-realistic FE models for numerical homogenisation

The FE model has been built using an ad-hoc computational procedure that corresponds to the "generation of the structure at the mesoscopic scale" step of the flowchart presented in Figure 5. In order to obtain a semi-realistic meso-structure of the cork-based composite, some aspects of fundamental importance needs to be considered. The first aspect is the variable polygonal shape of cork particles that show multiples facets and sharp angles. Moreover, cork particles exhibit transversely isotropic mechanical behaviour, whose material and geometrical frames are randomly oriented within the meso-structure. All these points have been integrated in the algorithm coded in Python environment which aims at generating a meso-structure of the cork-based agglomerate close enough to the real one.

Generation of the meso-structure: Parametric model

The parametric model of the agglomerate meso-structure essentially relies on the VT algorithm. The choice of the VT for representing the geometry of the meso-structure is the most natural one when looking at the true structure of the cork-based composite shown in Figure 7.

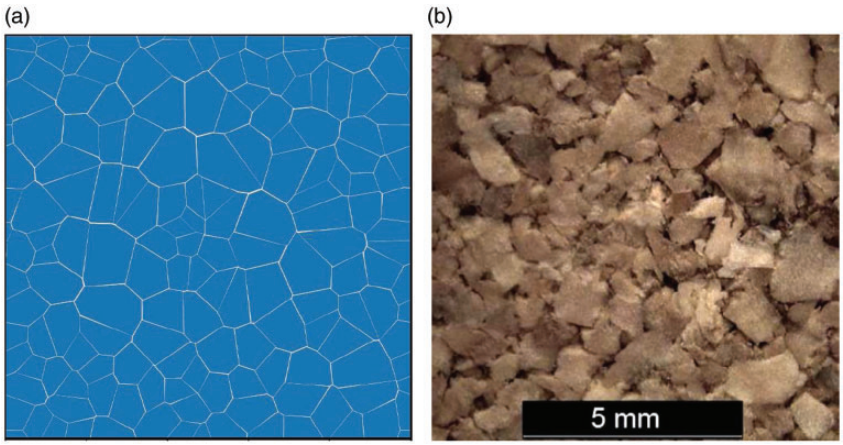


Figure 7. The parametric model (a) and an image of a cork-based composite (b) taken from the study by Jardin et al.[13]

By properly calibrating the parameters of the VT algorithm, it is possible to obtain different configurations of the meso-structure. However, as it can be seen from Figure 7(b), the cork particles are not always arranged according to the Voronoi's configuration but sometimes they are overlapped. Moreover, cork particles show a transverse isotropic elastic behaviour which must be taken into account along with their random arrangement within the agglomerate. All of these aspects are of paramount importance to obtain a semi-realistic meso-structure of the agglomerate. Therefore, classical VT algorithm has been extended by implementing the following features.

Random geometric orientation of cork particles. Polygons generated through the VT are rotated around their centre of mass by a random angle to obtain particles without parallel adjacent facets. As shown in Figure 8, the rotation of polygons is carried out through the algorithm described here below.

Algorithm 1. Polygons random rotation.

1: Exclude the polygons whose edges belong to the RVE boundary.
2: Evaluate the number of remaining polygons N_p. Initialise the slack variable $k = 1$ and set its upper bound to N_p.
3: Set $\lambda \in [0.5, 0.99]$. Select the polygon k and rotate it by a random angle $\theta \in [0°, 359°]$.
4: Build the set of the ID of polygons adjacent to polygon k, i.e. $S_k = (i_1, \ldots, i_{n_k})$. Let n_k be the total number of polygons belonging to S_k. Set the slack variable $j = 1$.
5: Check intersection between polygons k and i_j. If intersection occurs go to point 6, otherwise go to point 7.
6: $\theta \leftarrow \lambda\theta$ and go to point 5.
7: $j = j + 1$. If $j < n_k$ go to point 5, otherwise continue.
8: The initial polygon is replaced by the rotated one.
9: $k = k + 1$. If $k < N_p$ go to point 3, otherwise continue.
10: Generate the RVE with rotated polygons.

Random material frame orientation of cork. Cork has an anisotropic mechanical behaviour and it can be considered roughly as a transversely isotropic material, as discussed in the study by Gibson et al.,[6] where average values of the elastic moduli were evaluated on different cork specimens, as reported in Table 6 (the elastic properties were evaluated according to the frame illustrated in Figure 1). Technical elastic constants E_{ci}, G_{cij} and ν_{cij} (with i,j = 1,2,3) are, respectively, the Young's moduli, the shear moduli and the Poisson's ratios of cork in the reference frame $\{0; x_1, x_2, x_3\}$.

In order to take into account the random orientation of the material frame of each particle of cork, with respect to the global frame $\{0; x, y, z\}$ of the 2D meso-scale FE model, an arbitrary three-dimensional (3D) rotation of the material frame is applied. For a transversely isotropic material, the 3D stiffness matrix **C** can be written as follows

$$[C] = \begin{bmatrix} \frac{1-\nu_{c13}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & \frac{\nu_{c21}+\nu_{c13}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & \frac{\nu_{c31}+\nu_{c21}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\nu_{c21}+\nu_{c13}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & \frac{1-\nu_{c13}\nu_{31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & \frac{\nu_{c31}+\nu_{c12}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\nu_{c31}+\nu_{c21}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & \frac{\nu_{c31}+\nu_{c12}\nu_{c31}}{E_{c1}E_{c3}\Delta} & \frac{1-\nu_{c12}\nu_{c21}}{E_1^2\Delta} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & G_{c13} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & G_{c13} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{E_{c1}}{2(1+\nu_{c12})} \end{bmatrix} \tag{14}$$

where

$$\Delta = \frac{1-(\nu_{c12}\nu_{c21})-2(\nu_{c13}\nu_{c31})-2(\nu_{c21}\nu_{c31}\nu_{c13})}{(E_{c1}^2E_{c3})} \tag{15}$$

The 3D rotation of the material frame is described using Euler's angles ψ, β and γ.[56] The stiffness matrix in the rotated frame is expressed as

$$[C'] = [R][C][R]^T \tag{16}$$

where R is the rotation matrix described in the study by Vannucci.[57] The technical elastic constants, to be assigned to a cork particle in the 2D FE model, are the constants get by the matrix $[C']$ in the rotated frame considering only the components in the global reference plane $x - y$ due to the plane strain hypothesis.

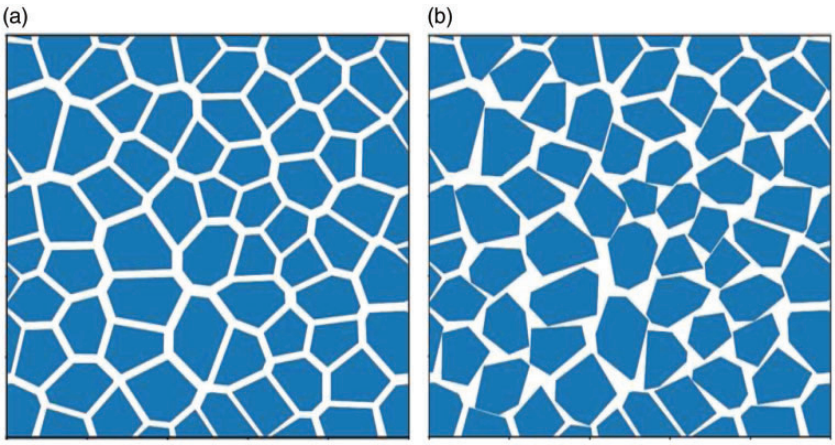


Figure 8. RVE with parallel-faced particles (a) and with the geometric rotation of particles (b).

Generation of the agglomerate RVE: The algorithm. The flowchart of the algorithm developed for the generation of the agglomerate RVE is shown in Figure 9. The main steps charactering such an algorithm are described here below.

1. N points are randomly generated within one eight of the overall RVE volume. A minimum distance D_{min} between two points is defined in order to delete and regenerate points placed at a distance lower than D_{min}.
2. The volume generated at the first step is duplicated eight times and translated along six different directions (top, bottom, right, left, and along two main diagonals) in order to ensure the periodicity of points belonging to the RVE boundary.
3. The polygons are created using the VT algorithm.
4. A scaling factor is applied to all the polygons in order to reduce their dimensions and create voids that will be filled by the matrix (resin). The scaling factor is directly related to the matrix volume fraction.
5. Particles are rotated by means of the Algorithm 1. This new feature allows generating a geometrical meso-structure of the RVE which is closer to the real one.
6. The material frame of each particle is randomly turned and the material properties of each particle are defined in this frame.

The FE model

The FE model of the cork-based composite RVE has been built into the ANSYS® environment. The geometry is parametrised and generated in Python by means of the algorithm presented in the previous section and then passed to the ANSYS environment in order to carry out the required FE analyses.

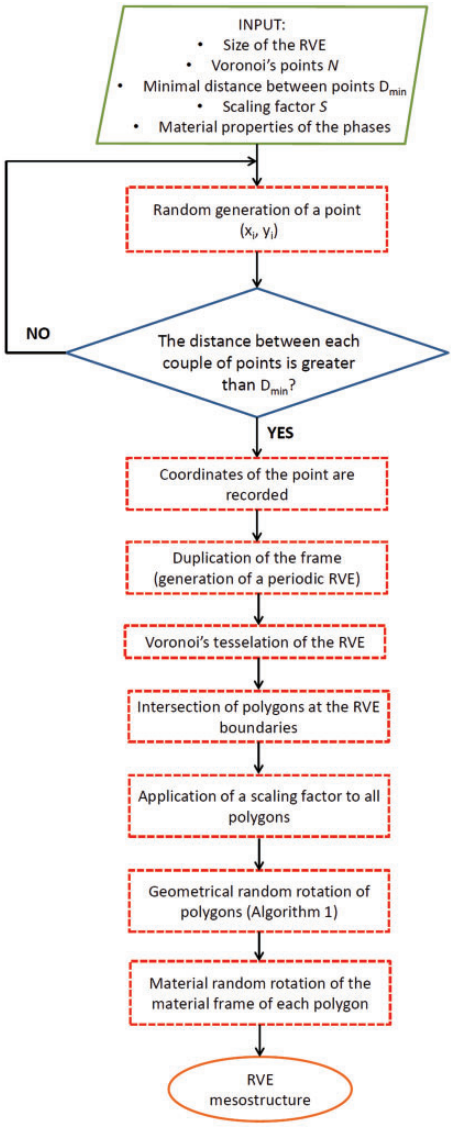


Figure 9. Flowchart of the algorithm to generate the meso-structure of the RVE. RVE: representative volume element.

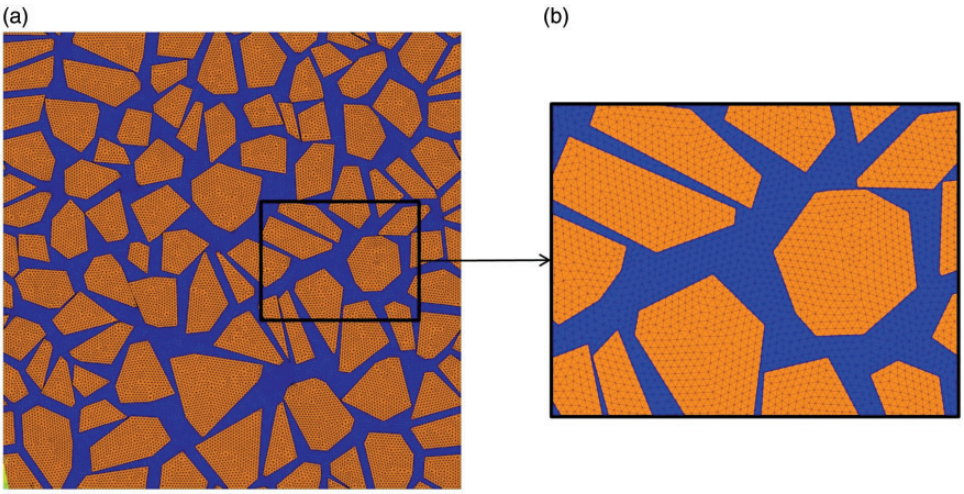


Figure 10. Finite element model of the RVE (a) and detail of the mesh (b).

For the structural static analyses, the six-node plane quadratic triangular element PLANE 183, with two degrees of freedom per node, has been used. While for the steady-state thermal analysis the six-node plane quadratic triangular element PLANE 77, with a single degree of freedom, i.e. the temperature, at each node, has been used. Furthermore, for mechanical analyses, the plain strain option has been activated.

The model along with its mesh is illustrated in Figure 10.

In order to derive the equivalent stiffness tensor of the homogeneous material at the macroscopic scale, three static analyses are required with the BCs listed in Table 3. On the other hand, in order to determine the equivalent conductivity tensor, only two thermal analyses are performed by using the BCs listed in Table 4. Finally, to evaluate the effective CTEs, only a single analysis is needed by using either the BCs of equation (10) or the PBCs of equation (12), for ME1 or ME2, respectively.

Numerical study

In this section, a sensitivity analysis of the effective thermomechanical properties of the cork-based agglomerate to the main material and geometrical parameters of the meso-structure has been carried out. In particular, the influence of (a) the material properties of the constitutive phases, (b) the matrix volume fraction, (c) the average size and (d) the geometric and material orientation of the cork particles on the macroscopic thermomechanical behaviour is investigated.

Table 5. Properties of the cork-based composites used for the mesh sensitivity analysis.

Property	Value
Mass percentage of cork	84%
Mass percentage of resin	16%
Diameter of the particles	0.5 mm and 1 mm
Particles of 0.5 mm	50%
Particles of 1 mm	50%

FE-model calibration

Before performing the sensitivity analysis in terms of both geometrical and material parameters of the agglomerate RVE, the effect of the mesh size on the cork-based composite macroscopic behaviour must be analysed. The FE-model calibration has been carried out on a realistic configuration of the agglomerate characterised by the properties listed in Table 5.

The material properties of the constitutive phases of the agglomerate, i.e. natural cork and resin, are listed in Table 6. This composition corresponds to a composite with a matrix volume fraction equal to 0.02 calculated using data in Tables 5 and 6.

The sensitivity of the equivalent macroscopic behaviour of the cork-based composite to the mesh size has carried out on three different RVE sizes (10, 90 and 180 mm^2) where only the mesh density (i.e. number of elements per unit area) varies while the rest of the RVE parameters are kept constant. The convergence has been checked by analysing the numerical values of components Q_{xx}, Q_{yy} and Q_{ss} of the stiffness matrix. For the sake of brevity, only the values of Q_{xx} versus the mesh density for an RVE size of 10 mm^2 are illustrated in Figure 11. The curves relative to the other two components Q_{yy} and Q_{ss} of the stiffness matrix lead to

Table 6. Material properties of the cork and the epoxy resin.

Material	Density	Mechanical properties	Thermal properties
Cork	120 (kg/m^3)[14]	$E_{c1} = E_{c2} = 13$ (MPa)[6] $E_{c3} = 20$ (MPa)[6] $G_{c12} = 4.3$ (MPa)[6] $G_{c13} = E_{c23} = 2.5$ (MPa)[6] $\nu_{c12} = 0.5$[6] $\nu_{c13} = \nu_{c23} = 0$[6]	$K_c = 0.045$ (W/mK)[5] $\alpha_c = 180$ (10^{-6}(C°)$^{-1}$)[54]
Epoxy resin	1100 (kg/m^3)[14]	$E_m = 2810$ (MPa)[14] $\nu_m = 0.39$[14]	$K_c = 0.35$ (W/mK)[14] $\alpha_c = 55$ (10^{-6}(C°)$^{-1}$)[55]

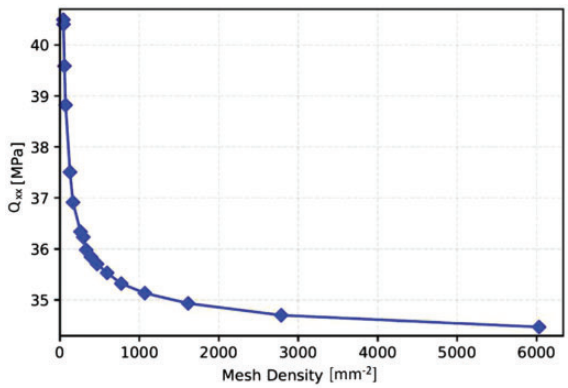


Figure 11. Q_{xx} versus the mesh density for an RVE of 10 mm^2.

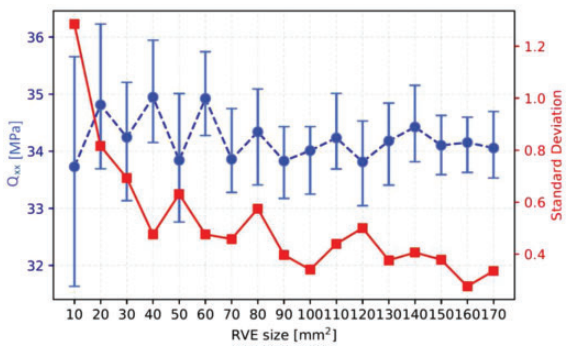


Figure 12. Q_{xx} and its standard deviation versus the RVE size. RVE: representative volume element.

the same conclusions given by Figure 11. The convergence of elastic properties is achieved for a value of the mesh density equal to 2779 mm^{-2}.

The second aim of the FE-model calibration phase is the identification of the smaller size of the RVE capable to properly represent the macroscopic behaviour of the composite material. Seventeen values of the RVE size have been analysed and for each one of them, 10 different meso-structures have been generated, using a mesh density equal to 2779 mm^{-2}. For these analyses, the matrix volume fraction has been kept equal to 0.02. The values Q_{xx}, Q_{yy} and Q_{ss} of the stiffness matrix have been analysed by focusing on the standard deviation. Adopting a tolerance interval not greater than 1% for the standard deviation of each elastic property, the convergence has been achieved for an RVE size equal to 130 mm^2. For the sake of brevity, only the values of Q_{xx} and its standard deviation versus the RVE size are shown in Figure 12. The same consideration can be repeated for the other components of the agglomerate stiffness tensor at the macroscopic scale.

Parametric analysis

Once the FE-model has been calibrated in terms of mesh density and RVE size, a parametric analysis can be performed in order to investigate the influence of the most relevant geometrical and material parameters of the RVE on the macroscopic thermal and mechanical properties of the cork-based composite. All the analyses have been carried out on RVE configurations characterised by a random geometric orientation and the random material frame orientation of cork particles.

Table 7. Reference value, variation interval and discretisation step for each parametric analysis.

Parameters	Reference value	Interval	Discretization step
Matrix volume fraction (V_m)	0.02	0.02 ÷ 0.10	0.01
Particle size variability (mm) (C_{var})	0.25	0.25 ÷ 0.45	0.05

A reference value has been chosen for each design variable and, for each parametric analysis, only one parameter at time is changed as listed in Table 7.

The parameter C_{var} is the standard deviation of the average value of all the particles of the RVE represented by circles of equivalent area.

In the first parametric analysis, the effect of matrix volume fraction on the macroscopic material properties of the composite has been evaluated. Numerical results

have been compared to the analytical models of Reuss-Voigt and of Hashin-Shtrikman.

Furthermore, the degree of elastic symmetry of the resulting composite has been evaluated according to the criterion presented in the study by Catapano and Jumel.[26] In the present work, the components of the stiffness matrix **Q** have been compared to determine the degree of elastic symmetry of the cork-based composite. In fact, for an isotropic material, the stiffness matrix **Q** in terms of homogenised Young's modulus and Poisson's ratio is

$$Q = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \begin{bmatrix} 1-\nu & \nu & 0 \\ \nu & 1-\nu & 0 \\ 0 & 0 & 2(1-2\nu) \end{bmatrix} \tag{17}$$

Therefore, for an isotropic material the ratios Q_{yy}/Q_{xx} and $Q_{ss}/((Q_{xx}-Q_{xy})/2)$ are equal to one, while the ratios Q_{xs}/Q_{xx} and Q_{ys}/Q_{xx} are equal to zero. Assuming a tolerance interval of ± 0.05, the cork-based composite exhibits a cubic behaviour in all numerical results related to the first parametric analysis, as shown in Figure 13. Accordingly, the composite material is characterised, at the macroscopic scale, by three independent elastic constants. Indeed, in the case of cubic symmetry, the shear modulus does not depend upon the Young's modulus and the Poisson's ratio.

The Young's modulus and the shear modulus of the cork-based composites as function of the matrix volume fraction are shown in Figures 14 and 15, respectively. Of course, since the matrix is stiffer than the cork, the greater the matrix volume fraction, the higher the stiffness of the agglomerate.

Equivalent elastic properties fall within RV-LB and RV-UB and of HS-LB and HS-UB. More precisely, the numerical results are closer to the lower bounds.

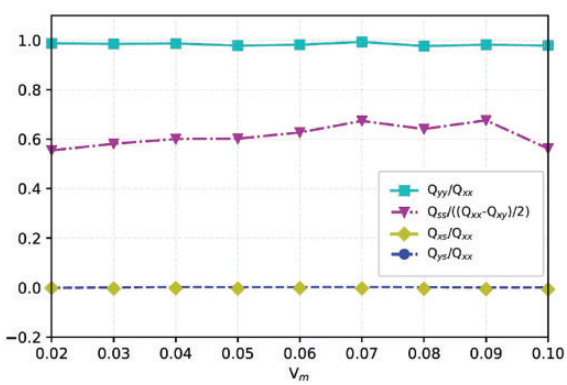


Figure 13. Ratios Q_{yy}/Q_{xx}, $Q_{ss}/((Q_{xx}-Q_{xy})/2)$, Q_{xs}/Q_{xx} and Q_{ys}/Q_{xx} versus the matrix volume fraction V_m.

The equivalent Poisson's ratio falls within RV and HS bounds and it is closer to the upper bounds for high values of the matrix volume fraction, as shown in Figure 16.

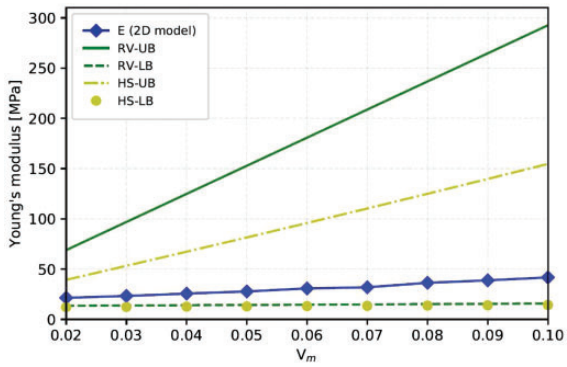


Figure 14. Young's modulus versus the matrix volume fraction V_m. RV-LB: Reuss-Voigt's Lower Bounds; RV-UB: Reuss-Voigt's Upper Bounds; HS-LB: Hashin-Shtrikman Lower Bounds; HS-UB: Hashin-Shtrikman Upper Bounds; 2D: two-dimensional.

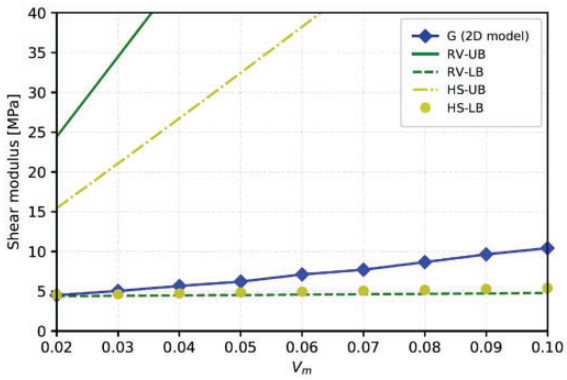


Figure 15. Shear modulus versus the matrix volume fraction V_m. RV-LB: Reuss-Voigt's Lower Bounds; RV-UB: Reuss-Voigt's Upper Bounds; HS-LB: Hashin-Shtrikman Lower Bounds; HS-UB: Hashin-Shtrikman Upper Bounds.

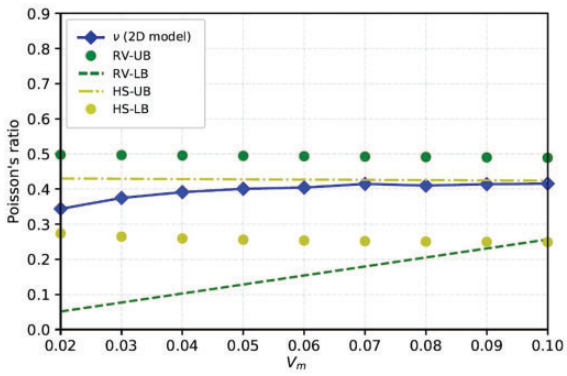


Figure 16. Poisson's ratio versus the matrix volume fraction V_m. RV-LB: Reuss-Voigt's Lower Bounds; RV-UB: Reuss-Voigt's Upper Bounds; HS-LB: Hashin-Shtrikman Lower Bounds; HS-UB: Hashin-Shtrikman Upper Bounds.

The variation of the effective thermal conductivity coefficients versus the matrix volume fraction V_m is presented in Figure 17. Numerical results show that effective thermal conductivity increases when the matrix volume fraction increases. Also in this case, numerical results have been compared to analytical ones.

Finally, the variation of the composite CTEs versus the V_m has been analysed. The results reported in Table 8 summarise the variation of the effective CTEs, evaluated by means of both the analytical models SC[46] and CH[48] and the numerical models ME1 and ME2, versus the matrix volume fraction. Both SC and CH models allow determining the longitudinal and transverse CTEs (i.e. α_x and α_y, respectively) of fibres-reinforced composites. The SC model considers an isotropic behaviour for both matrix and fibres, while the CH model takes into account the transversely isotropic behaviour of the fibre. Therefore, for the case of particle-based composites as cork-based agglomerates, the analytical results calculated with SC and CH models can be considered as bounds. The percentage difference (PD) between the CTEs obtained using ME1 and ME2 techniques is also reported in Table 8. It can be noticed that the maximum PD between the results given by the two methods is equal to 2.55%. Moreover, concerning the trend of the CTEs, it can be observed that the greater V_m, the lower α_x and α_y.

In the second parametric analysis, five configurations of the RVE with a different particle size variability C_{var} have been analysed. The elastic constants of the composite are presented in Table 9: in agreement with experimental tests presented in the study by Kim,[14] the greater the variability in the size of cork grains, the higher the stiffness of the agglomerate. Furthermore, as shown in Table 10, also when varying the particle size variability, the cork-based composite exhibits a

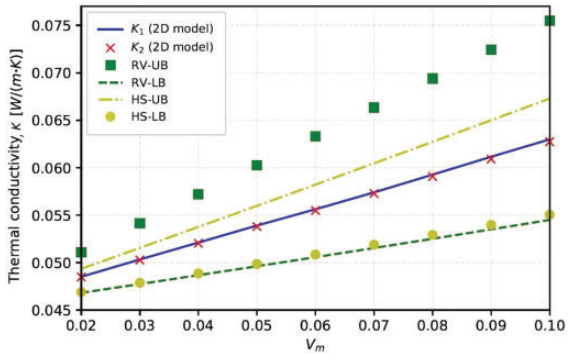


Figure 17. Thermal conductivity coefficient k versus the matrix volume fraction V_m. RV-LB: Reuss-Voigt's Lower Bounds; RV-UB: Reuss-Voigt's Upper Bounds; HS-LB: Hashin-Shtrikman Lower Bounds; HS-UB: Hashin-Shtrikman Upper Bounds; 2D: two-dimensional.

Table 8. CTEs versus the matrix volume fraction V_m.

	α_x and α_y ($10^{-6}(C^o)^{-1}$)					
V_m	SC, CH (α_x)	SC (α_y)	CH (α_y)	ME1 (α_x, α_y)	ME2 (α_x, α_y)	PD[a] (α_x, α_y)
0.02	87.32	177.25	178.80	123.08, 125.41	121.31, 123.61	1.45, 1.45
0.03	78.38	175.98	178.17	115.02, 113,59	112.70, 111.46	2.04, 1.89
0.04	73.24	174.71	177.53	106.53, 106.42	104.02, 104.05	2.38, 2.25
0.05	69.89	173.46	176.90	101.30, 102.82	98.78, 100.64	2.52, 2.14
0.06	67.54	172.20	176.26	99.08, 98.60	96.76, 96.31	2.37, 2.35
0.07	65.80	170.96	175.61	94.34, 97.21	92.01, 95.13	2.50, 2.16
0.08	64.46	169.70	174.96	92.78, 94.13	90.44, 92.23	2.55, 2.04
0.09	63.39	168.45	174.31	92.38, 91.97	90.34, 90.05	2.23, 2.11
0.10	62.53	167.21	173.65	91.87, 89.46	89.75, 87.55	2.33, 2.16

CTE: coefficients of thermal expansion; SC: Schapery; CH: Chamis; PD: percentage difference.
[a]Percentage difference between the numerical results of ME1 and ME2.

Table 9. Elastic moduli versus the cork particle size variability C_{var}.

	C_{var} (mm)				
Effective elastic moduli	0.25	0.30	0.35	0.40	0.45
E (MPa) (2D model)	21.4658	21.7246	22.1801	22.6906	22.8395
G (MPa) (2D model)	4.5053	4.7293	4.9041	5.1929	5.2382
ν (2D model)	0.3436	0.3392	0.3351	0.3325	0.3276

2D: two-dimensional.

Table 10. Ratios Q_{yy}/Q_{xx}, $Q_{ss}/((Q_{xx}-Q_{xy})/2)$, Q_{xs}/Q_{xx} and Q_{ys}/Q_{xx} versus the cork particle size variability C_{var}

	C_{var} (mm)				
Ratio	0.25	0.30	0.35	0.40	0.45
Q_{yy}/Q_{xx}	0.987	0.9865	0.9864	0.9865	0.9862
$Q_{ss}/((Q_{xx}-Q_{xy})/2)$	0.5542	0.5748	0.5893	0.6003	0.6149
Q_{xs}/Q_{xx}	−0.0004	−0.0028	−0.0051	−0.0061	−0.0063
Q_{ys}/Q_{xx}	−0.0016	0.0002	0.0018	0.0031	0.0034

Table 11. Properties of the cork-based composites used for the case study.

Property	Value
Cork volume fraction	0.65
Matrix volume fraction	0.35
Diameter of the particles	1 mm and 3 mm
Particles of 1 mm	50%
Particles of 3 mm	50%

cubic behaviour. In particular, the cubic behaviour seems to be more pronounced when increasing the particle size variability.

Case study

To further prove the effectiveness of the proposed modelling strategy, numerical results are compared to the experimental ones presented in the study by Kim.[14] The cork-based composite tested in the study by Kim[14] is characterised by the composition given in Table 11.

In the study by Kim,[14] the author used square specimens and conducted a compressive test to determine the Young's modulus. An isotropic epoxy resin with $E = 2810$ MPa and $\nu = 0.39$ has been used as matrix. The elastic properties of the natural cork used for these tests were not specified. Accordingly, data taken from the study by Gibson et al.[6] and detailed in Table 6, regarding average values of the mechanical behaviour of cork have been used.

Firstly, the FE model has been calibrated: the convergence of elastic properties has been found for a mesh density of 2779 mm^{-2} and for an RVE size of 500 mm^2.

In order to verify the effect of the random geometric and material rotation of the particles on the model response, the effective elastic moduli have been evaluated for four different configurations of the FE model.

1. No geometric and material frame rotation of particles.
2. Random geometric rotation of particles activated but not the material frame one.
3. Random material frame rotation of particles activated but not the geometrical one.
4. Both random geometric and material frame rotation of particles activated.

Table 12. Young's modulus for the four different configurations of the RVE of the cork-based agglomerate.

Young's modulus	[14]	First case	Second case	Third case	Fourth case
E (MPa)	180	210	170	217	177

The Young's modulus obtained with the present numerical model for each one of the previous configurations is shown in Table 12. Numerical results of the configuration characterised by a rotation of both geometrical and material frames of the particles are in very good agreement with the experimental ones. This result is a "numerical proof" of the importance of the new features implemented within the classic VT algorithm to model cork-based composites. Moreover, as it can be observed from Table 12, also the Young's modulus evaluated in the second test case (i.e. when only the random geometric rotation of particles is activated) is close enough to the experimental value found in the study by Kim.[14] This phenomenon can be explained by looking at Figure 18 where a comparison between the Von Mises stress obtained for a uniaxial traction test along the x-direction of the RVE is given. In particular, Figure 18(a) shows the Von Mises stresses obtained on the model corresponding to the third test case (i.e. where only random material frame orientation is active) while Figure 18(b) shows the Von Mises stresses generated in the model corresponding to the fourth test case. From Figure 18(a) and (b), it can be observed that the stress field is mainly localised into the matrix and it is influenced by the arrangement of cork particles. Unlike the classical VT where particles have parallel sides and the "matrix path" is smooth, when a random geometric rotation of particles is activated, the matrix path between particles is "warped" due to the particle rotation and the stress flow is redistributed

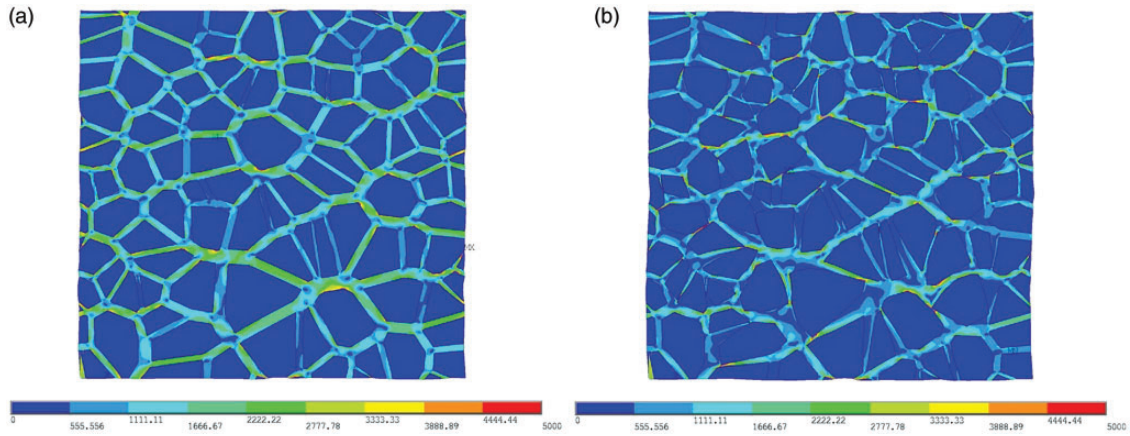


Figure 18. Von Mises stress in the FE-model of the RVE corresponding to the third test case (a) and to the fourth test case (b), uniaxial traction along *x*-direction.

between matrix and particles. Since cork particles are less stiff than the matrix, the configuration with the random geometric rotation of particles shows a Young's modulus lower than that characterising a classical Voronoi's arrangement of particles.

Conclusions and perspectives

In this work, a general numerical model for determining the equivalent thermomechanical properties of cork-based agglomerates has been presented. This model is based, on the one hand, on a general numerical homogenisation scheme, and, on the other hand, on an enhanced version of the VT algorithm. Special attention has been put on the development of a numerical model of the RVE reproducing all the main features of the meso-structure of the composite: random orientation of particles and random orientation of the material frame of each particle as well.

The effectiveness of the proposed modelling strategy has been proven through a large campaign of numerical tests and by means of a comparison with some experimental results taken from literature. In a first time, the calibration of the FE-model of the RVE is performed and then, a parametric homogenisation analysis is carried out. The numerical results highlight that the thermomechanical properties of the cork-based composite are affected, not only by the constitutive phases volume fraction but also by the variability of the particle size. Moreover, by analysing the components of the stiffness matrix of the homogenised material, it has been proven that the cork-based composite exhibits a cubic elastic symmetry at the macroscopic scale. Therefore, the shear stiffness modulus is independent from the Young's modulus and the Poisson's ratio. This result is in agreement with those presented in the study by Catapano and Jumel[26] which focuses on the analysis of the degree of symmetry of particle-reinforced composites.

Finally, the results provided by the proposed modelling strategy have been compared to experimental data taken from literature. Results show that, when a random rotation of both the particle and its material frame are taken into account, the numerical results are in excellent agreement with the experimental ones, thus proving the effectiveness of the enhanced version of the VT algorithm.

As far as perspectives of this work are concerned, research is ongoing, on the one hand, on the generalisation of the algorithm for generating a realistic meso-structure of the cork-based agglomerate to the 3D case and, on the other hand, on the integration into the modelling strategy of the following features: the variability of both geometric and material parameters of the RVE, the non-linear thermomechanical behaviour of the material, the influence on the overall macroscopic behaviour of the compression stress field into the particles due to the process (e.g. compression moulding) and the influence of imperfect interfaces between matrix and cork particles.

Acknowledgements

The first author is grateful to the Nouvelle-Aquitaine region, Lièges HPK and SAFRAN Power Units for their contribution to this paper through the LIAMA project.

Declaration of conflicting interests

The author(s) declared no potential conflicts of interest with respect to the research, authorship, and/or publication of this article.

Funding

The author(s) disclosed receipt of the following financial support for the research, authorship, and/or publication of this

article: The authors received a financial support for the research of this article through Nouvelle Aquitaine Region LIAMA project.

ORCID iD

Marco Montemurro https://orcid.org/0000-0001-5688-3664

References

1. Pereira H. The rationale behind cork properties: a review of structure and chemistry. *BioResources* 2015; 10: 1–23.
2. Pereira H. *Cork: biology, production and uses*. Amsterdam: Elsevier.
3. Pereira H. Chemical composition and variability of cork from Quercus suber L. *Wood Scitechnol* 1988; 22: 211–218.
4. Arteiro AJC. *State-of-the-art: sandwich structures applications in impact situations*. Research Initiation Scholarship Report, Technical Report. Porto: Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, University of Porto, 2010.
5. Silva SP, Sabino MA, Fernandes EM, et al. Cork: properties, capabilities and applications. *Int Mater Rev* 2008; 53: 256–256.
6. Gibson LJ, Easterling KE and Ashby MF. The structure and mechanics of cork. *Proc Roy Soc A Math Phys Eng Sci* 1981; 377: 99–117.
7. Mano JF. Creep-recovery behaviour of cork. *Mater Lett* 2007; 61: 2473–2477.
8. Oliveira V, Rosa ME and Pereira H. Variability of the compression properties of cork. *Wood Sci Technol* 2014; 48: 937–948.
9. Fortes MA and Emília Rosa M. Boletim Do Instituto Dos Produtos Florestais Cortiça. *Densidade da cortiça: factores que a influenciam* 1988; 593: 65–68.
10. Gil L. *Cortiça: produção, tecnologia e aplicação*. Lisbon, 1998.
11. Fortes MA and Nogueira MT. The poison effect in cork. *Mater Sci Eng* 1989; A122: 272–232.
12. Medeiros H. *Boletim da Junta Nacional de Cortiça*. APCOR, Associacao Portuguesa da Cortica, 1945, pp. 165–170.
13. Jardin R, Fernandes F, Pereira A, et al. Static and dynamic mechanical response of different cork agglomerates. *Mater Des* 2015; 68: 121–126.
14. Kim S. *A study on cork-based plastic composite material*. Cambridge: Massachusetts Institute of Technology, 2011.
15. Moreira RAS, De Melo FJQ and Dias Rodrigues JF. Static and dynamic characterization of composition cork for sandwich beam cores. *J Mater Sci* 2010; 45: 3350–3366.
16. Gil L. Cork composites: a review. *Materials* 2009; 2: 776–789.
17. Anjos O, Pereira H and Rosa ME. Effect of quality, porosity and density on the compression properties of cork. *Holz Roh Werkst* 2008; 66: 295–301.
18. Anjos O, Pereira H and Rosa ME. Tensile properties of cork in the tangential direction: variation with quality, porosity, density and radial position in the cork plank. *Mater Des* 2010; 31: 2085–2090.
19. Anjos O, Pereira H and Rosa ME. Characterization of radial bending properties of cork. *Eur J Wood Prod* 2011; 69: 557–563.
20. Anjos O, Rodrigues C, Morais J, et al. Effect of density on the compression behaviour of cork. *Mater Des* 2014; 53: 1089–1096.
21. Santos PT, Pinto S, Marques PA, et al. Agglomerated cork: a way to tailor its mechanical properties. *Compos Struct* 2017; 178: 277–287.
22. Santos T, Amaral J, Costa V, et al. Thermal conductivity of agglomerate cork. *Mater Res Proceed* 2017; 3: 1–10.
23. Castro O, Silva JM, Devezas T, et al. Cork agglomerates as an ideal core material in lightweight structures. *Mater Des* 2010; 31: 425–432.
24. Riedinger R, Habar M, Oelhafen P, et al. About the Delaunay-Voronoi tesselation. *J Comput Phys* 1988; 74: 61–72.
25. Barbero EJ. Finite element analysis of composite materials using ansys, http://books.google.it/books?id=tWx_NLLD14wC&printsec=frontcover&dq=Finite+element+analysis+of+composite+materials&hl=en&sa=X&ei=BkKuT4_9GOnE4gTLx5ysCQ&redir_esc=y#v=onepage&q=Finiteelement analysis of composite materi als&f=false (2013, accessed 16 April 2019).
26. Catapano A and Jumel J. A numerical approach for determining the effective elastic symmetries of particulate-polymer composites. *Compos Part B Eng* 2015; 78: 227–243.
27. Montemurro M, Catapano A and Doroszewski D. A multi-scale approach for the simultaneous shape and material optimisation of sandwich panels with cellular core. *Compos Part B Eng* 2016; 91: 458–472.
28. Gentieu T, Catapano A, Jumel J, et al. Computational modelling of particulate-reinforced materials up to high volume fractions: linear elastic homogenisation. *Proc Inst Mech Eng Part L J Mater Des Appl* 2019; 233(6): 1101–1116.
29. Cappelli L, Montemurro M, Dau F, et al. Characterisation of composite elastic properties by means of a multi-scale two-level inverse approach. *Compos Struct* 2018; 204: 767–777.
30. Refai K, Montemurro M, Brugger C, et al. Determination of the effective elastic properties of titanium lattice structures. *Mech Adv Mater Struct* 2019; 16: 1–4.
31. Einstein A. Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. *Ann Phys* 1905; 322: 549–560.
32. Broadbent TAA, Einstein A, Hertz H, et al. Investigations on the Theory of the Brownian Movement. *Math Gazette* 1957; 41: 231.
33. Guth E. Theory of filler reinforcement. *J Appl Phys* 1945; 16: 20–25.
34. Halpin JC. Stiffness and expansion estimates for oriented short fiber composites. *J Compos Mater* 1969; 3: 732–734.
35. Halpin JC. *Effects of environmental factors on composite materials*. Technical Report Afml-Tr-67-423, June 1969.

Wright-Patterson Air Force Base, OH: Air Force Materials Laboratory, 1969.
36. Kerner EH. The elastic and thermo-elastic properties of composite media. *Proc Phys Soc B* 1956; 69: 808–813.
37. Voigt W. Ueber die Beziehung zwischen den beiden Elasticitatsconstanten isotroper korper. *Ann Phys* 1889; 274: 573–587.
38. Reuss A. Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle. *Z Angew Math Mech* 1929; 9: 49–58.
39. Hashin Z and Shtrikman S. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *J Mech Phys Solids* 1963; 11: 127–140.
40. Chmielewski M and Weglewski W. Comparison of experimental and modelling results of thermal properties in Cu-AlN composite materials. *Bull Polish Acad Sci Tech Sci* 2013; 61: 507–514.
41. Eshelby JD. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclution and related problems. *Proc Phys Soc Lond Series A* 1957; 241: 376–396.
42. Mori T and Tanaka K. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica* 1973; 21: 571–574.
43. Hill R. A self-consistent mechanics of composite materials. *J Mech Phys Solids* 1965; 13: 213–222.
44. Budiansky B. On the elastic moduli of some heterogeneous materials. *J Mech Phys Solids* 1965; 13: 223–227.
45. Lielens G, Pirotte P, Couniot A, et al. Prediction of thermo-mechanical properties for compression moulded composites. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 1998; 29: 63–70.
46. Schapery RA. Thermal expansion coefficients of composite materials based on energy principles. *J Compos Mater* 1968; 2: 380–404.
47. Chamberlain NJ. *Derivation of expansion coefficients for a fibre reinforced composites*. Technical Report. London: British Aircraft Corporation, 1968.
48. Chamis CC. Simplified composite micromechanics equations for hygral, thermal and mechanical properties. In: *38th Annual Conference of the Society of the Plastics Industry (SPI) Reinforced Plastics/Composites Institute*, Houston, TX, 7–11 February 1983.
49. Rosen BW and Hashin Z. Effective thermal expansion coefficients and specific heats of composite materials. *Int J Eng Sci* 1970; 8: 157–173.
50. Sadd M. *Elasticity: theory applications and numerics*, http://books.google.com/books?hl=en&lr=&id=l3YpAgAAQBAJ&oi=fnd&pg=PP1&dq=Elasticity+Theory,+Applications+and+Numerics&ots=qZruCihSg3&sig=UqaYiBQxpKtBTlOrYrlSf8BWR4Q%5Cn (2009, accessed 17 April 2019).
51. Sihn S and Roy AK. Micromechanical analysis for transverse thermal conductivity of composites. *J Compos Mater* 2011; 45: 1245–1255.
52. Karch C. Micromechanical analysis of thermal expansion coefficients. *Model Numer Simul Mater Sci* 2014; 4: 104–118.
53. Bowles DE and Tompkins SS. Prediction of coefficients of thermal expansion for unidirectional composites. *J Compos Mater* 1989; 23: 370–388.
54. Ashby M, Cope E and Cebon D. Materials selection for engineering design. In: Rajan K (ed) *Informatics for materials science and engineering*. Oxford: Butterworth-Heinemann, 2013, pp. 219–244.
55. Mottram JT, Geary B and Taylor R. Thermal expansion of phenolic resin and phenolic-fibre composites. *J Mater Sci* 1992; 27: 5015–5026.
56. Evans PR. Rotations and rotation matrices. *Acta Crystallogr D Biol Crystallogr* 2001; 57: 1355–1359.
57. Vannucci P. General anisotropic elasticity. *Lecture Notes Appl Comput Mech* 2018; 85: 19–73.

Chapitre 3

Approche stochastique pour la prédiction des propriétés élastiques dépendant de la température

L'article *A stochastic approach for predicting the temperature-dependent elastic properties of cork-based composites*, présenté dans ce chapitre, a été publié dans la revue internationale *Mechanics of Materials* (Delucia et al. 2020). Il traite du développement d'une stratégie numérique, basée sur une approche stochastique, pour prédire les propriétés élastiques, à l'échelle mésoscopique de l'aggloméré, dépendent de la température et sous incertitude. Le liège naturel montre une grande variabilité de ses propriétés mécaniques qui dépendent, notamment, de la position géographique de production des chênes-lièges et de la variabilité de sa structure chimique-physique.
Une procédure de calcul a été développée pour générer un modèle EF 2D et 3D de la mésostructure du matériau hétérogène et pour déterminer les propriétés effectives de l'aggloméré grâce à la technique basée sur l'énergie de déformation des milieux périodiques. Une attention particulière a été accordée à l'amélioration de l'algorithme développé dans le travail précédent [111] afin de générer des modèles EF du VER capables de reproduire également la présence de pores et de particules concaves de liège. Dans le but de déterminer les propriétés effectives de l'aggloméré en fonction de la température, des fonctions de densité de probabilité normales ont été utilisées pour représenter et quantifier la variabilité des propriétés élastiques du liège. Ensuite, cette source de variabilité a été propagée dans la démarche d'homogénéisation en utilisant un algorithme de Monte Carlo. Cette stratégie a permis d'introduire la variabilité et l'incertitude des valeurs d'entrée dans le processus d'homogénéisation et d'étudier leur effet sur les valeurs de sortie, c'est-à-dire les propriétés élastiques effectives du composite à l'échelle macroscopique.
Tout d'abord, l'efficacité de la stratégie de modélisation développée a été évaluée au moyen d'une comparaison des propriétés élastiques effectives obtenues par les modèles EF 2D et 3D et un modèle basé sur le traitement d'image du composite à base de liège. Les résultats numériques montrent que l'utilisation du modèle 3D permet de prendre en compte, par rapport aux modèles 2D, la géométrie polyédrique des composants et l'état de contrainte triaxial. Par la suite, les propriétés effectives, pour quatre températures différentes (25, 100, 200 and 300 ^{o}C), ont été évaluées sur une configuration réaliste de l'aggloméré en utilisant à la fois le modèle 2D et 3D. Une analyse de convergence, présentée dans l'annexe

B, a été réalisée afin de déterminer la taille du VER. La distribution des valeurs des constantes élastiques effectives, pour le cas 2D et 3D, est illustrée dans l'annexe C. Les résultats numériques montrent que la rigidité de l'aggloméré diminue avec l'augmentation de la température. De plus, les valeurs des constantes élastiques effectives du matériau résultant, à chaque température, ont tendance à suivre une distribution normale avec une valeur inférieure de l'écart type comparé à celui du liège naturel. Ce résultat souligne que les composites à base de liège présentent une meilleure stabilité des propriétés élastiques que le liège naturel et, à notre connaissance, il s'agit d'un nouveau résultat dans la littérature.

ERRATUM : Les valeurs du côté L du VER rapportées dans l'article, déterminées par l'analyse de convergence présentée dans l'annexe B, ne sont pas correctes. Concernant le cas 2D, une valeur de L égale à 13.04 mm (pas 170 mm) a été déterminée correspondant à un VER de 170 mm^2. Pour le cas 3D, une valeur de L égale à 6 mm (pas 216 mm) a été déterminée correspondant à un VER de 216 mm^3.

Mechanics of Materials 145 (2020) 103399

Contents lists available at ScienceDirect

Mechanics of Materials

journal homepage: www.elsevier.com/locate/mechmat

Research paper

A stochastic approach for predicting the temperature-dependent elastic properties of cork-based composites

Marco Delucia[a], Anita Catapano[*,b], Marco Montemurro[a], Jérôme Pailhés[a]

[a] Arts et Métiers Institute of Technology, Université de Bordeaux, CNRS, INRA, Bordeaux INP, HESAM Université, I2M UMR 5295, Talence F-33405, France
[b] Bordeaux INP, Université de Bordeaux, Arts et Mtiers Institute of Technology, CNRS, INRA, HESAM Université, I2M UMR 5295, Talence F-33405, France

ARTICLE INFO

Keywords:
Cork-based composites
Variability
Voronoi's tessellation
Homogenisation
Finite element method
Uncertainty

ABSTRACT

This work deals with the problem of predicting the temperature-dependent equivalent elastic properties of cork-based composites by investigating the influence of the variability related to the material properties of natural cork. A dedicated numerical homogenisation approach based on the strain energy of periodic and a-periodic media has been developed to this purpose. The proposed methodology is based, on the one hand, on an efficient modelling strategy capable to generate 2D and 3D finite element models which closely emulates the realistic meso-structure of the agglomerate. On the other hand, the strategy makes use of the Monte Carlo algorithm to study the influence of the variability in model inputs on the equivalent elastic behaviour of the cork-based composite at different temperatures. Firstly, the effectiveness of the modelling strategy in representing a realistic meso-structure of the agglomerate, in terms of geometry, has been evaluated by comparing the numerical results to digital images of real cork-based composites. Secondly, the homogenisation strategy has been applied to a realistic configuration of cork agglomerate. Numerical results show that the greater the temperature the lower the overall stiffness of the agglomerate, according to natural cork trends, but the variability related to the macroscopic equivalent elastic properties of the agglomerate is considerably lower than that affecting the elastic behaviour of the natural cork, which represents a positive result concerning the use of cork agglomerates in industrial applications.

1. Introduction

Cellular materials represent a wide class of natural and artificial materials with a great potential for advanced applications. Among natural, biodegradable, renewable and recyclable cellular materials, cork caught the attention of both scientific and industrial communities thanks to its remarkable properties. Extracted from the outer bark of *Quercus Suber L.*, cork is light, highly abrasion-resistant, fire retardant, impermeable to liquids and gases. Cork is also characterised by outstanding thermal, sound insulation and shock absorption capacity. This set of properties is mainly due to the combination of a honeycomb-like microstructure, composed of closed cells filled with an air-like gas, and a chemical composition characterised, essentially, by two polymers: the suberin, the main component of the cell walls and responsible of the compliance, and the lignin responsible of stiffness and strength properties (Pereira, 2007).

Some studies have been conducted to experimentally investigate the variability in chemical composition of cork, in particular in terms of suberin and lignin content. Lopes et al. (2001) have observed, by analysing 12 cork samples collected at different sites in southern Portugal, a high variability in the value of the suberin content. This is mainly due to a different amount and size of lenticular channels in each cork sample (generally the smaller the quantity and the diameter of the channels the lower the suberin content). Pereira (2013) evaluated the chemical composition of different cork samples collected at 2 production sites in Portugal. A high variability in suberin and lignin content has been found among different samples, even between those coming from the same geographical area. Therefore, the material properties of cork vary as a consequence of the variability in its basic components, i.e. not only lignin and suberin, but also porosity, density, etc. Approximately since 1980, cork became subject of different research activities. In particular, the interest of the scientific community for cork grew considerably since the 2000s. Some studies have been conducted to assess the variability in mechanical properties of cork. Gibson et al. (1981) tested different cork specimens under compression. Experimental results highlight a significant dispersion in the values of elastic constants of the cork. Mean values of the distribution, obtained experimentally, show that cork exhibits a roughly transversely isotropic

* Corresponding author.
E-mail address: anita.catapano@bordeaux-inp.fr (A. Catapano).

https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2020.103399
Received 10 January 2020; Received in revised form 11 March 2020; Accepted 14 March 2020
Available online 17 March 2020
0167-6636/ © 2020 Elsevier Ltd. All rights reserved.

behaviour. By evaluating the compression properties of 200 cork boards collected at 10 different locations (20 corks per location), Oliveira et al. (2014) showed that the high variability in elastic properties of cork is mainly due to the high variability in its density, annual growth ring width and chemical composition. Thus, variability in cork properties is the result of environmental effects of each specific geographical location of cork production. Moreover, the variability of cork is also temperature-dependent. Indeed, Rosa and Fortes (1988) studied the compression behaviour of cork at different temperatures by testing several samples. The mean values of the Young's moduli along the three directions decrease when the temperature increases. The highest variability in elastic properties is recorded at two different temperatures: 25 °C and 100 °C.

In order to exploit cork properties in industrial applications, cork particles are embedded in a polymeric matrix with the aim to obtain, usually by means of a compression moulding process, cork-based composites or agglomerates (Pereira, 2007). Cork agglomerates exhibit a mechanical, thermal and acoustic behaviour similar to that of the natural cork (Pereira, 2007; Jardin et al., 2015; Kim, 2011) and can be exploited in several applications, like floor coverings, thermal insulators, sandwich panels or even as heat shields in the aerospace field (Gil, 2009). The mechanical properties of cork-based composites depend on the main design parameters as the density, the cork quality and variety, the fraction and the size of cork particles in the mixture, the quantity and the type of polymeric matrix, the manufacturing process and the overall packing density (Jardin et al., 2015; Anjos et al., 2008; 2010; 2011; 2014; Santos et al., 2017a; 2017b). Of course, the macroscopic behaviour of the agglomerate is unavoidably affected by the natural variability of material properties of the cork and this aspect can negatively influence the industrial application of cork-based agglomerates. Therefore, an evaluation of the variability of cork-based composites is a mandatory task. However, only a limited number of works related to this topic is present in the literature. Jardin et al. (2015) tested four types of cork-based composites, characterised by different grain size and density. The variability related to the Young's modulus of the agglomerate (assumed isotropic at the macroscopic scale) was about ten times lower than that found in Rosa and Fortes (1988) for the Young's moduli of the natural cork. This result was observed on different samples taken from the same material.

To the best of the authors knowledge, no numerical investigation on the influence of the variability related to material properties of the cork on the macroscopic behaviour of the cork-based agglomerate is available in the literature. The goal of this study is to propose a general and efficient computational procedure, exploiting a homogenisation technique based on the finite element (FE) method, capable of evaluating the influence of the variability related to the elastic behaviour of cork on the macroscopic equivalent elastic properties of the agglomerate at different temperatures. Several analytical models have been developed to evaluate the elastic properties of heterogeneous materials (Einstein, 1905; Broadbent et al., 1957; Voigt, 1889; Reuss, 1929; Hashin and Shtrikman, 1963; Eshelby, 1957; Mori and Tanaka, 1973; Hill, 1965; Budiansky, 1965; Lielens et al., 1998) based on semi-empirical equations and simplifying hypotheses that do not allow to take into account for the effect of localised fields on the prediction of macroscopic behaviour of the composite. Of course, the macroscopic behaviour of heterogeneous materials can also be evaluated through experiments. However, the measurements imply expensive experimental campaigns in terms of time and costs. To this purpose, numerical homogenisation methods have been developed in order to obtain more accurate results than those provided by analytical models and less expensive analyses than experimental ones. Indeed, FE-based homogenisation techniques are very general because they limit the number of simplifying assumptions (Cappelli et al., 2019a; 2019b; Delucia et al., 2019; Refai et al., 2019; Bertolino et al., 2019; Montemurro et al., 2016; Catapano and Montemurro, 2014; Fernandino et al., 2015).

In presence of uncertainty, in terms of material and geometrical properties of the components, the classical deterministic FE-based homogenisation methods are coupled to a stochastic approach. The perturbation-based homogenisation technique allows to approximate the probabilistic moments of the structure response by means of Taylor expansion (Kamiński, 2013). For instance, Sakata et al. (2008) have investigated the influence of microscopic uncertainty on the effective elastic properties of unidirectional fiber reinforced plastics using a first and a second-order perturbation-based homogenisation method. Kamiński and Kleiber (2000) proposed a second-order perturbation-based homogenisation method and a stochastic second central moment technique to solve the homogenisation problem in the case of variability in elastic constants of the constituents for two-phase periodic composites. Zhou et al. (2016) proposed a computational homogenisation method coupled with a second-order perturbation technique for predicting the effective elastic properties of heterogeneous materials characterised by random material properties of the constituents. All these works showed that the perturbation-based method is not general and can lead to incorrect evaluation of the elastic constants when the variability is high. On the other hand, the approaches exploiting the synergy between the FE-based homogenisation methods and the Monte Carlo (MC) algorithm proved to be a sound alternative because the evaluation of the stochastic response of the structure does not depend upon the degree of variability in input variables. Spanos and Kontsos (2008) proposed a FE-based homogenisation procedure coupled with the MC algorithm for determining the elastic properties of nanocomposites (polymers reinforced with single-walled carbon nanotubes) taking into account the variable orientation of the nanotubes within the matrix. For a deep insight into the topic of the variability of elastic properties of particle reinforced composites due to the meso-structure geometry, the reader is addressed to Stefanou et al. (2017) and Savvas et al. (2014).

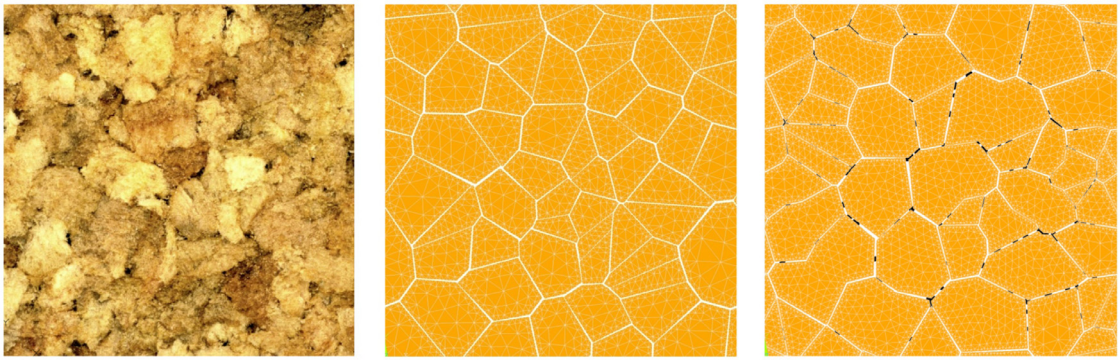
Table 1
BCs for the 2D FE model of the RVE.

1st load case	2nd load case	3rd load case
$\Delta u_x \neq 0$	$\Delta u_x = 0$	$\Delta u_x = \frac{\Delta u}{2}$
$\Delta u_y = 0$	$\Delta u_y \neq 0$	$\Delta u_y = \frac{\Delta u}{2}$

To achieve the main goal of the present work, the multi-scale numerical homogenisation procedure presented in Delucia et al. (2019) and based on a 2D FE model of the representative volume element (RVE) of the cork-based agglomerate, has been improved in order to take into account the main geometrical and material properties (and the related uncertainty) of the real meso-structure of the agglomerate. In particular, more accurate 2D and 3D FE models of the RVE at the mesoscopic scale have been developed for predicting, by means of a stochastic approach, the variability of the equivalent elastic properties of cork agglomerates at the macroscopic scale, due to the uncertainty involved at the microscopic scale, at different temperatures. Furthermore, new features have been added to the algorithm for the generation of the agglomerate meso-structure presented in Delucia et al. (2019). This features allow reproducing convex and concave cork particles and the presence of porosities.

The whole procedure makes use of (a) the strain energy homogenisation method, (b) a generalised Voronoi's tesselation (VT) algorihtm and (c) the MC algorithm. The effectiveness of the proposed methodology is proved by comparing the results of homogenisation analyses on the VT-based meso-structure with those obtained by using digital images of real cork-based composites. Moreover, the variability of the equivalent elastic properties of the agglomerate are also presented by highlighting the degree of elastic symmetry of the resulting material, in presence of uncertainty at the microscopic scale.

The paper is organised as follows: the FE-based homogenisation method is briefly recalled in Section 2. The VT-based models of the



(a) (b) (c)

Fig. 1. Real meso-structure of the cork agglomerate PSF30 produced by Lièges HPK company (Lige, 2020) (a), the 2D FE model developed in Delucia et al. (2019) (b) and the new 2D agglomerate meso-structure generated by the algorithm presented in this work (c).

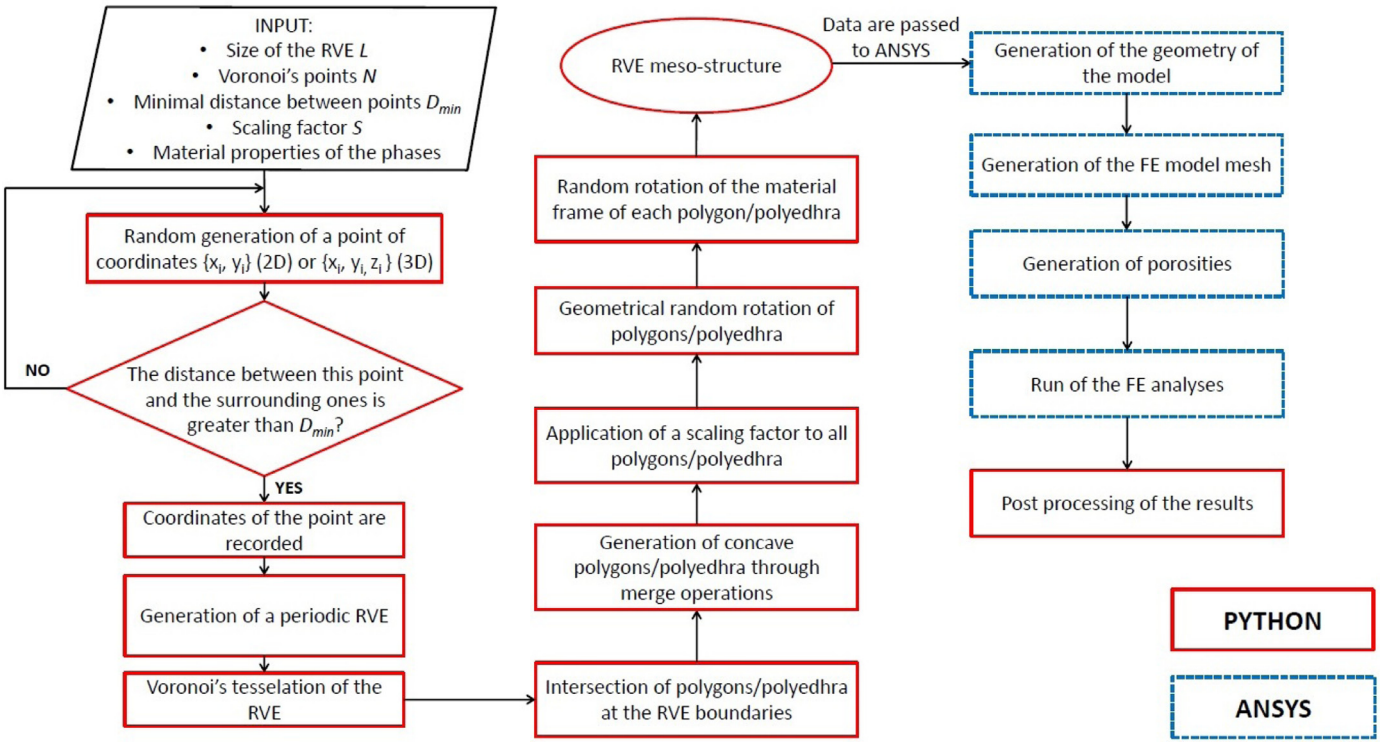


Fig. 2. Flowchart of the computational procedure used to generate the meso-structure of the RVE and to determine the composite elastic properties.

meso-structure as well as the related 2D and 3D FE models are detailed in Section 3. The numerical homogenisation strategy under uncertainty is described in Section 4, while the preliminary study and the prediction of the temperature-dependent effective properties of the agglomerate are illustrated in Section 5. Finally, some conclusions and perspectives are presented in Section 6.

2. The strain energy homogenisation technique

The effective properties of cork agglomerates are determined using the strain energy homogenisation technique of periodic media (Barbero, 2013; Catapano and Jumel, 2015) which is based on the assumption that the RVE of the periodic heterogeneous structure and the corresponding volume of the equivalent homogeneous solid undergo the same deformation having, hence, the same strain energy. The strain energy homogenisation method is applied in both 2D (under plane strain hypothesis) and 3D cases.

In this work, the effective elastic properties of the cork agglomerate are determined assuming: (a) linear elastic behaviour for the material of the constitutive phases and (b) perfect bonding for the wall-to-wall contact between matrix and particles.

2.1. The 2D case under plane strain hypothesis

The generalised Hooke's law, with respect to the global frame {O; *x*, *y*, *z*} of the 2D mesoscale FE model and under plane strain hypothesis is:

$$\begin{Bmatrix} \bar{\sigma}_x \\ \bar{\sigma}_y \\ \bar{\sigma}_s \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} Q_{xx} & Q_{xy} & Q_{xs} \\ Q_{yx} & Q_{yy} & Q_{ys} \\ Q_{sx} & Q_{sy} & Q_{ss} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \bar{\varepsilon}_x \\ \bar{\varepsilon}_y \\ \bar{\varepsilon}_s \end{Bmatrix} , \tag{1}$$

where $\bar{\sigma}$ and $\bar{\varepsilon}$ are, respectively, the volume averaged stress and strain vectors, expressed in Voigt's notation, referred to the equivalent medium of the RVE after homogenisation. The components of the stiffness matrix **Q** are expressed under the plane strain field assumption (Sadd, 2009).

The set of periodic boundary conditions (PBCs) applied to the RVE is:

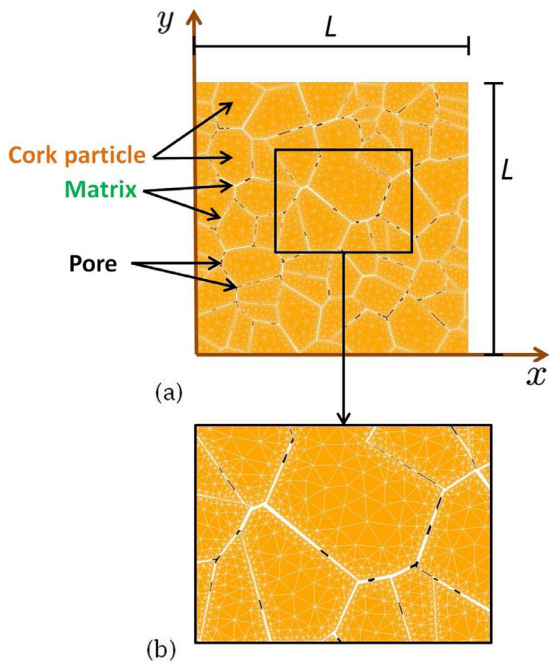


Fig. 3. 2D FE model of the RVE (a) and detail of the mesh (b).

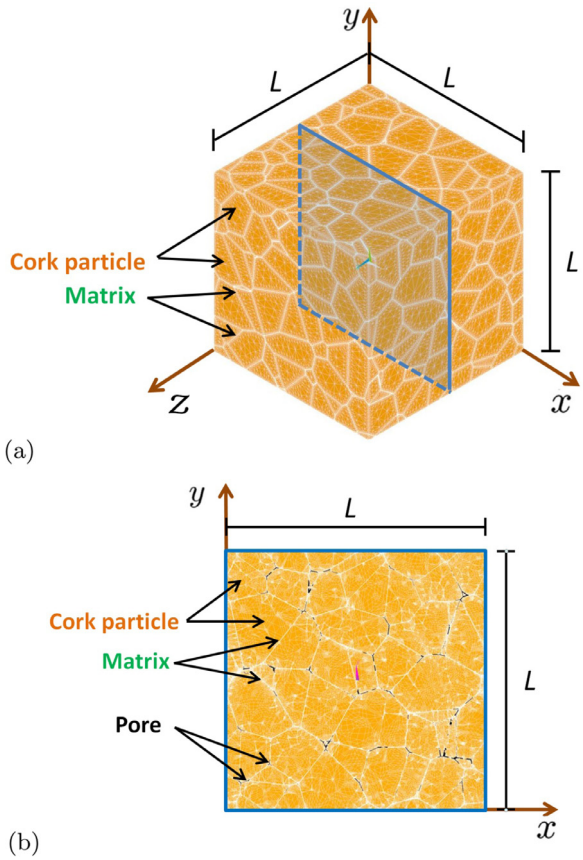


Fig. 4. 3D FE model of the RVE (a) and its section view (b).

$$\mathbf{u}(0, y) - \mathbf{u}(L, y) = \Delta u_x \mathbf{e}_x \quad ,$$
$$\mathbf{u}(x, 0) - \mathbf{u}(x, L) = \Delta u_y \mathbf{e}_y \quad , \tag{2}$$

where $\mathbf{u}$ is the displacement vector, while $\mathbf{e}_x$ and $\mathbf{e}_y$ are the unit vectors along x and y axes, respectively. Δu_x and Δu_y are arbitrary displacements imposed on the RVE. Therefore, by applying the arbitrary displacements listed in Table 1, it is possible to determine column-wise the components of matrix $\mathbf{Q}$ for the cork-based composite. These boundary conditions (BCs) correspond to three static analyses wherein only one component of the strain tensor $\bar{\varepsilon}$ is different from zero.

The components of $\mathbf{Q}$ can be expressed in terms of the average strain and stress fields inside the RVE as

$$Q_{\alpha\beta} = \frac{\bar{\sigma}_\alpha}{\bar{\varepsilon}_\beta}, \qquad \text{with} \quad \alpha, \beta = x, y, s \quad \text{and} \quad \varepsilon_\gamma = 0,$$
$$\text{with} \quad \gamma = x, y, s \quad , \quad \gamma \neq \beta \quad . \tag{3}$$

The average stress field, in the previous equation, is computed as follows

$$\bar{\sigma}_\alpha = \frac{1}{A_{\text{RVE}}} \int_{A_{\text{RVE}}} \sigma_\alpha(x, y)\, dA \quad , \qquad \alpha = x, y, s \quad , \tag{4}$$

where A_{RVE} is the overall area of the RVE, whilst the relations giving the average strain components read

$$\bar{\varepsilon}_x = \frac{\Delta u_x}{L}, \quad \bar{\varepsilon}_y = \frac{\Delta u_y}{L}, \quad \bar{\varepsilon}_s = \frac{\Delta u}{L} \quad , \tag{5}$$

where L is the characteristic length of the square RVE of the agglomerate as shown in Fig. 3.

2.2. The 3D case

The generalised Hooke's law (Voigt's notation) with respect to the global frame for the equivalent homogeneous anisotropic medium reads:

$$\{\bar{\sigma}\} = \mathbf{C}\{\bar{\varepsilon}\} \quad . \tag{6}$$

The components of the stiffness matrix $\mathbf{C}$ can be expressed in terms of the average strain and stress fields inside the RVE:

$$C_{\alpha\beta} = \frac{\bar{\sigma}_\alpha}{\bar{\varepsilon}_\beta}, \text{with} \alpha, \beta = x, y, z, q, r, s \ \text{and} \varepsilon_\gamma = 0, \text{with} \gamma$$
$$= x, y, z, q, r, s \ \text{and} \gamma \neq \beta. \tag{7}$$

In order to evaluate the components of the stiffness matrix $\mathbf{C}$ of the agglomerate at the macroscopic scale, the RVE is submitted to an average strain field ε^0_{ij}, with $i, j = x, y, z$ (tensor notation). The six independent components of the average strain tensor are applied by considering the following set of PBCs (Barbero, 2013):

$$\begin{cases} u_i(a_1, y, z) - u_i(-a_1, y, z) = 2a_1 \\ \qquad\qquad \varepsilon^0_{ix}, (-a_2 \le y \le a_2, -a_3 \le z \le a_3), \\ u_i(x, a_2, z) - u_i(x, -a_2, z) = 2a_2 \\ \qquad\qquad \varepsilon^0_{iy}, (-a_1 \le x \le a_1, -a_3 \le z \le a_3), \\ u_i(x, y, a_3) - u_i(x, y, -a_3) = 2a_3 \\ \qquad\qquad \varepsilon^0_{iz}, (-a_1 \le x \le a_1, -a_2 \le y \le a_2), \end{cases} \tag{8}$$

where $i = x, y, z$, while a_j is the characteristic length of the RVE along the x_i axis. In the followings $a_1 = a_2 = a_3 = L$ because the considered RVE is cubic (Fig. 4). The average stress field, in the previous equation, is computed as follows

$$\bar{\sigma}_\alpha = \frac{1}{V_{\text{RVE}}} \int_{V_{\text{RVE}}} \sigma_\alpha(x, y, z) dV, \ \alpha = x, \cdots, s. \tag{9}$$

The components of matrix $\mathbf{C}$ for the cork agglomerate are determined column-wise by applying the PBCs of Eq. (8) and elementary uniaxial strain fields. This operation results in six static analyses wherein only one component of the strain tensor vector $\{\bar{\varepsilon}\}$ is different from zero.

1: Set the element edge length $E_{size} = \frac{L}{100}$ where L is the size of the RVE. Set the porosity volume fraction counter V_t=0.
2: Discretise all the lines of the polygons/polyhedra according to E_{size}. Mesh the geometry by imposing an incremental mesh size, up to four times E_{size}, from the geometry edges to the polygons/polyhedra internal area/volume. Generate the mesh.
3: If no errors occurs in mesh generation go to point 5, otherwise go to point 4.
4: Set the reduction parameter λ=E_{size}/20. $E_{size} \leftarrow (E_{size} - \lambda)$ and go to point 2.
5: Get centroid coordinates C_{ele}(x,y,z) of a random element belonging to the matrix.
6: Set a random value $D_{p-ran} \in \left[D_{p-min}, D_{p-max}\right]$ where D_{p-min} and D_{p-max} are the minimum and maximum pore diameter, respectively, chosen by the user. Select the set of IDs of elements belonging to the matrix (but not to RVE boudary) and whose centroid distance from C_{ele} is less than D_{p-ran}. The selected set is defined as $R_k = (i_1, \ldots, i_{n_k})$ where n_k is the total number of elements belonging to R_k. Set V_s as the sum of the areas/volumes of elements in R_k. $V_t \leftarrow (V_t + V_s)$ and delete elements belonging to R_k.
7: If $V_t \leq V_p$, where V_p is the porosity volume fraction arbitrary chosen by the user, go to point 5, otherwise continue.
8: Generate the FE model with porosities.

Algorithm 1. Mesh and porosity generation.

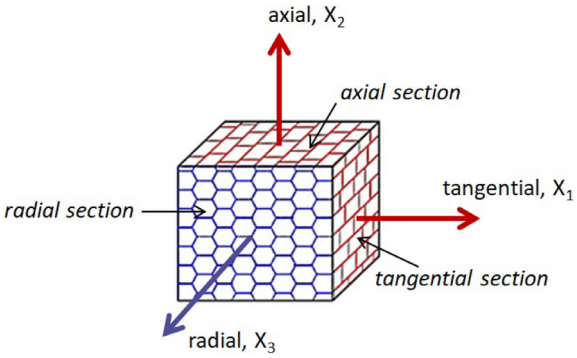


Fig. 5. Schematic representation of the honeycomb microstructure and reference frame of the cork particle.

3. Generation of a semi-realistic meso-structure of the cork-based agglomerate

With the aim of closely reproducing the real meso-structure of the cork-based composite, an enhanced version of the algorithm (Delucia et al., 2019) for the generation of the 2D FE model of the RVE, based on a modified VT algorithm, is presented in this study. The new features introduced in the algorithm proposed in Delucia et al. (2019) are: (a) the generalisation to the 3D case; (b) the extension of the modified VT algorithm in order to generate concave particles; (c) the generation of porosities inside the matrix. In particular, the generation of concave particles is anything but trivial because, as well-known, the classical VT algorithm is suited only for convex polygon (2D) or convex polyhedra (3D). Following the strategy proposed in Delucia et al. (2019), the FE models of the RVE are fully parametrised in terms of size, shape and anisotropy orientation of the particles, volume fraction of components, random particles arrangement and orientation.

As shown in Fig. 1, the algorithm proposed in this work, compared to the previous one (Delucia et al., 2019), allows generating a more accurate meso-structure, as confirmed by visual comparison with the image of a true meso-structure of cork-based composite, the latter being characterised by some concave particles and porosities or voids between cork grains.

Moreover, the generation of porosities inside the matrix, whose volume fraction is really small for cork-based agglomerates (typically not greater than 5%), represents a complicated task and requires an *ad-hoc* mesh generation strategy in order to avoid distorted elements. To this purpose, the new algorithm has been also improved to generate a FE model whose mesh is adapted to the complex geometry (great variability in size and shape of surfaces and volumes).

The equivalent elastic properties of the cork agglomerate, at the macroscopic scale, have been determined according to the computational procedure illustrated in Fig. 2. The entire code is implemented in Python® environment and interfaced with parametric FE models implemented in the ANSYS® code by using the ANSYS Parametric Design Language (APDL). The details of the different steps are discussed in the following subsections.

3.1. Preprocessing phase

Input data provided by the user in Python environment are: the RVE size L, the volume fraction of constitutive phases (particles, matrix and pores), the particle minimum size D_{min} and the elastic properties of each constituent. Firstly, the geometry of the RVE (without porosities) is generated in Python using an algorithm whose main steps are described here below.

1. *N seed points* (SPs) are randomly generated within a suitable subset (depending on the problem dimension, i.e. 2D or 3D) of the overall RVE domain (whose characteristic length is L). A minimum distance

Table 2
Material properties of the cork and the epoxy resin.

Material	Mechanical properties	Temperatures [°C] 25	100	200	300
Cork †	E_3^c [MPa] Rosa and Fortes (1988)	16.8 ± 5.8	14.5 ± 9.3	4.8 ± 2.1	2.4 ± 1.6
	$E_1^c = E_2^c$ [MPa] Rosa and Fortes (1988)	12.4 ± 2.3	7.6 ± 1.8	3.4 ± 0.8	0.9 ± 0.2
	$G_{13}^c = G_{23}^c$ [MPa] Gibson et al. (1981)	2.5	2.1577 *	0.7142 *	0.3571 *
	$\nu_{13}^c = \nu_{23}^c$ Gibson et al. (1981)	0	0 *	0 *	0 *
	ν_{12}^c Gibson et al. (1981)	0.5	0.5 *	0.5 *	0.5 *
Epoxy resin	E [MPa] Liu et al. (2017)	3220	2670	1980	1293
	ν Liu et al. (2017)	0.346	0.346	0.346	0.346

† Benchmark material.
* G_{13}^c, ν_{13}^c and ν_{12}^c are available in Gibson et al. (1981) only at the temperature of 25 °C. Their values at higher temperatures are assumed.

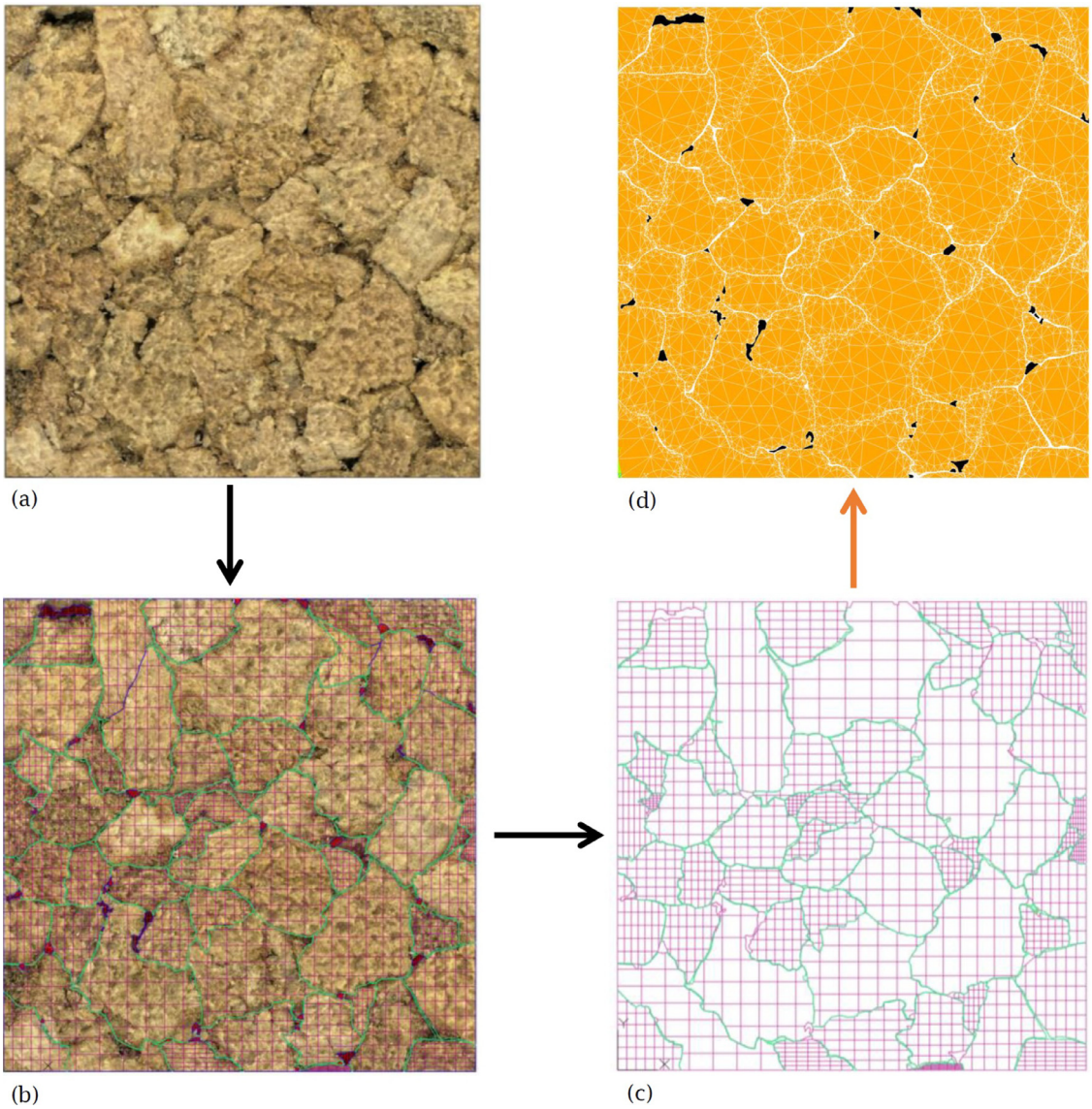


Fig. 6. Generation process of the DIB FE model of the PNM20 agglomerate: starting from a digital image taken with a microscope (a), a CAD reconstruction (b) has been carried out in order to obtain a CAD model (c) to build the DIB FE model of the agglomerate (d).

D_{min} must be set by the user in order to delete and regenerate SPs placed at a distance lower than D_{min}.

2. The generated SPs are opportunely duplicated and translated along eight directions (2D case) or 26 directions (3D case) in order to ensure the periodicity of the RVE boundary.
3. The convex polygons (2D) or the convex polyhedra (3D) are created using the VT algorithm.
4. A random number of adjacent convex polygons/polyhedra is merged in order to create cork concave particles.
5. A scaling factor is applied to all polygons/polyhedra in order to reduce their size and create a region that will be filled by the matrix (resin). The scaling factor depends on the matrix volume fraction.
6. A random geometric rotation is applied to each polygon/polyhedra by means of Algorithm 1 described in Delucia et al. (2019) with the purpose of obtaining particles arrangements without parallel adjacent facets in order to reproduce a more realistic mesostructure of the agglomerate.
7. The material frame of each particle is randomly turned and the material properties of each particle are defined in the global RVE frame.

The preprocessing phase requires a computational time of approximately 13 s (2D) and 42 s (3D), when two cores of a machine with an Intel Xeon E5-2697v2 processor (2.70-3.50 GHz) are used.

3.2. The finite element model

2D and 3D FE models of the RVE of the cork-based composite are implemented into the APDL and makes use of the geometric and material data generated in PYTHON as inputs to build the FE model and run the analysis. Concerning the 2D FE model, 6-nodes plane quadratic triangular elements under plane strain hypothesis, i.e. ANSYS PLANE 183, with two degrees of freedom (DOFs) per node and 3 integration Gauss points, have been used to carry out the required structural static analyses. The model along with its mesh is illustrated in Fig. 3. On the other hand, concerning the 3D FE model, 20-node solid element SOLID186, with three DOFs per node and 4 integration Gauss points are employed to perform the six static analyses required to derive the equivalent stiffness matrix of the homogenised material. The 3D FE model along its mesh is illustrated in Fig. 4. Both for 2D and 3D cases, as a consequence of the high complexity of meso-structure geometry, the mesh and the porosities have been generated by means of an *ad-hoc*

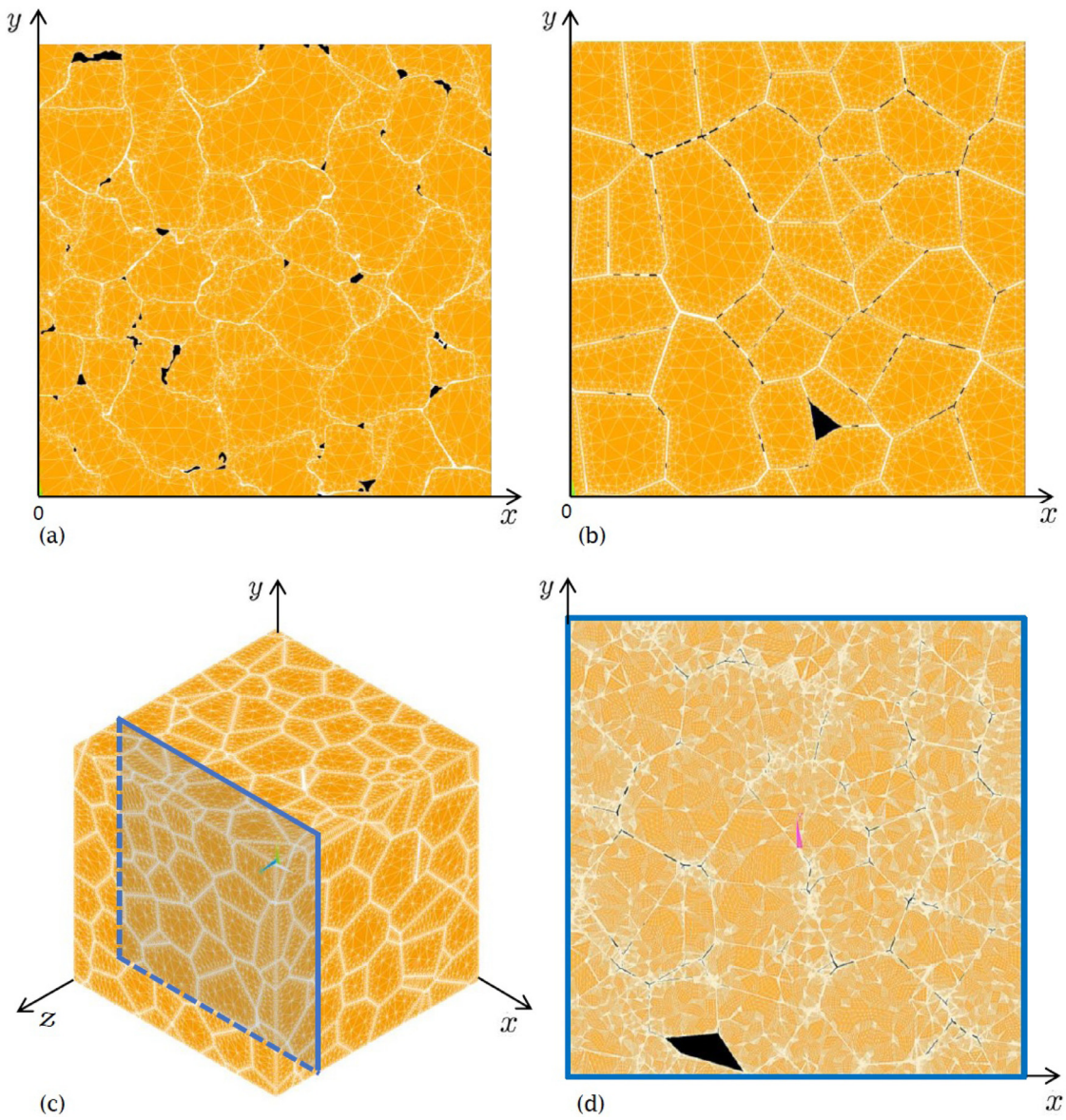


Fig. 7. The FE models of the cork-based composite PNM20: the DIB FE model (a), the 2D FE model (b), the 3D FE model (c) and its section view (d).

Table 3
Composition of the cork-based composite PNM20.

Property	Value
Cork volume fraction	97.00%
Matrix volume fraction	2.12%
Porosity volume fraction	0.88%
Diameter of the particles	1 mm and 2 mm
Particles of 1 mm	50%
Particles of 2 mm	50%

algorithm described in Algorithm 1.

According to Algorithm 1, the porosities are generated by removing elements belonging to matrix (but not located on the RVE boundary) in an iterative way until the user-defined porosity volume fraction is met. The effectiveness of the approach in generating porosities is evident by looking at Figs. 3 and 4.

4. Variability and propagation of uncertainty

The main source of uncertainty for cork-based composites lies in the material properties of cork. The macroscopic behaviour of the cork agglomerate is, thus, affected by a certain amount of variability due to the uncertainty at the lower scales. In this work, the uncertainty affecting the elastic properties of cork has been introduced into the homogenisation procedure through suitable probability density functions. Then, the MC algorithm is used to propagate this uncertainty and to analyse its effect on the variability of the equivalent elastic behaviour

Table 4
Material properties of the cork (Gibson et al., 1981) and of the polyurethane resin (De Castro San Román, 2005).

Material	Mechanical properties
Cork	$E_1^c = E_2^c = 13$ [MPa] $E_3^c = 20$ [MPa] $G_{12}^c = 4.3$ [MPa] $G_{13}^c = G_{23}^c = 2.5$ [MPa] $\nu_{12}^c = 0.5$ $\nu_{13}^c = \nu_{23}^c = 0$
Polyurethane resin	$E = 580$ [MPa] $\nu = 0.42$

Table 5
Criteria used to determine the degree of symmetry of the composite.

Criteria		
$\bar{E}_x/\bar{E}_y = 1$ (16)	$\bar{E}_y/\bar{E}_z = 1$ (17)	$\bar{E}_x/\bar{E}_z = 1$ (18)
$\bar{\nu}_{xy}/\bar{\nu}_{xz} = 1$ (19)	$\bar{\nu}_{xy}/\bar{\nu}_{yz} = 1$ (20)	$\bar{\nu}_{xz}/\bar{\nu}_{yz} = 1$ (21)
$\bar{G}_{xy}/\bar{G}_{xz} = 1$ (22)	$\bar{G}_{xy}/\bar{G}_{yz} = 1$ (23)	$\bar{G}_{xz}/\bar{G}_{yz} = 1$ (24)
$\bar{G}_{xy}/(\bar{E}_x/2(1+\bar{\nu}_{xy})) = 1$ (25)	$\bar{G}_{xz}/(\bar{E}_x/2(1+\bar{\nu}_{xz})) = 1$ (26)	$\bar{G}_{yz}/(\bar{E}_y/2(1+\bar{\nu}_{xz})) = 1$ (27)

Table 6
Average values of the effective elastic constants evaluated using the DIB FE model, the 2D FE model and the 3D FE model for the cork agglomerate PNM20.

Effective elastic constants	DIB	2D	*PD**(DIB-2D)	3D	*PD**(DIB-3D)	*PD**(2D-3D)
$\bar{E}_x$ [MPa]	14.6868	14.3253	2.4608%	16.9509	15.4156%	18.3275%
$\bar{E}_y$ [MPa]	14.8821	14.8904	0.0558%	16.6786	12.0716%	12.0090%
$\bar{\nu}_{xy}$	0.2388	0.2366	0.9335%	0.2661	12.4374%	12.4374%
$\bar{G}_{xy}$ [MPa]	3.6190	3.6176	0.0385%	6.2988	74.0463%	74.1133%

Percentage difference.

Table 7
Degree of symmetry of the DIB and the 2D FE model of the cork agglomerate PNM20.

Criterion	DIB FE-model	2D FE-model
(16)	0.9869	0.9620
(25)	0.6105	0.6246

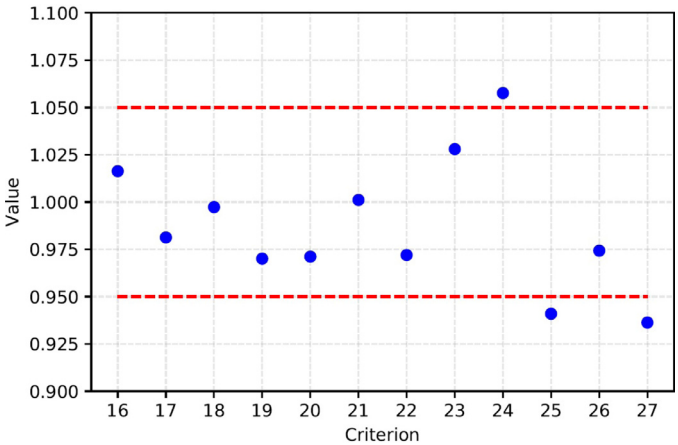


Fig. 8. Degree of symmetry of the 3D FE model of the cork agglomerate PNM20.

of the agglomerate at the macroscopic scale.

4.1. Distribution of material properties: probability density function

Let E_i^c, G_{ij}^c and ν_{ij}^c (with $i, j = 1, 2, 3$) be the Young's moduli, the shear moduli and the Poisson's ratios, respectively, of the generic cork particle in the material reference frame {O; x_1, x_2, x_3}, as shown in Fig. 5. The transversely isotropic behaviour of cork can be represented by five independent elastic constants taken from Rosa and Fortes (1988) and listed in Table 2. In Table 2, the cork elastic properties are given for four different values of temperature. However, as explained in Section 1, few data are available in the literature about the variability of cork elastic propertie. Therefore, according to Rosa and Fortes (1988), two main assumptions are considered in this study: (a) only the cork Young's moduli are affected by uncertainty; (b) the Young's moduli variability is described by a normal distribution.

The normal probability density function ND(x_i), of the generic property x_i, reads:

$$\mathrm{ND}(x_i) = :\frac{1}{\sigma(x_i)\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x_i-\mu(x_i))^2}{2\sigma^2(x_i)}}, \text{ with } x_i \in \mathbb{R}, \tag{10}$$

where the parameters $\mu(x_i)$ and $\sigma(x_i)$ are, respectively, the mean value and the standard deviation of the distribution of the *i-th* material property x_i. If x_{i_j} is the *j-th* value of x_i occurring with a probability p_{i_j}, the relative mean value and the standard deviation can be expressed as

$$\mu(x_i) = \sum_{j=1}^{N_i} x_{ij} p_{ij}, \; \sigma(x_i) = \sqrt{\mu(\beta_i(x_i))}, \; \beta(x_i) = :(x_i - \mu(x_i)). \tag{11}$$

Concerning the cork Young's moduli, their mean and extreme values are taken from Rosa and Fortes (1988) and listed in Table 2. It is noteworthy that, for a set of data following a normal distribution, it is possible to observe that:

- The 68.26% of data falls in [$\mu(x_i)$-$\sigma(x_i)$, $\mu(x_i)+\sigma(x_i)$];
- The 95.44% of data falls in [$\mu(x_i)$-$2\sigma(x_i)$, $\mu(x_i)+2\sigma(x_i)$];
- The 99.73% of data falls in [$\mu(x_i)$-$3\sigma(x_i)$, $\mu(x_i)+3\sigma(x_i)$].

Accordingly, the standard deviation $\sigma(x_i)$ for E_3^c and $E_1^c = E_2^c$ in Table 2, at each different temperature, can be calculated by assuming that the distribution of the values for each Young's modulus belongs to the range [$\mu(x_i)$-$3\sigma(x_i)$, $\mu(x_i)+3\sigma(x_i)$]. In particular, the reference distribution of each Young's modulus has been determined evaluating the $\sigma(x_i)$ as follows

$$\sigma(x_i) = \frac{|\mu(x_i) - \mathrm{ext}(x_i)|}{3}, \tag{12}$$

where ext(x_i) is one of the two extreme values provided in Table 2.

4.2. Monte Carlo simulation for homogenisation purposes

The MC simulation (Landau and Binder, 2014) is a technique commonly used to determine the probabilistic distribution of simulation results in presence of variability in input values. In particular, when coupled with the strain energy homogenisation technique of periodic media presented in Section 2, the MC simulation allows assessing the variability of the macroscopic mechanical response of the agglomerate due to the cork elastic properties uncertainty. This is a necessary step to be performed in order to get a pertinent probabilistic distribution of the cork-based composite elastic response. To this end, a sufficient number of simulations must be carried out. The numerical procedure follows three main steps: (a) the normal distribution is

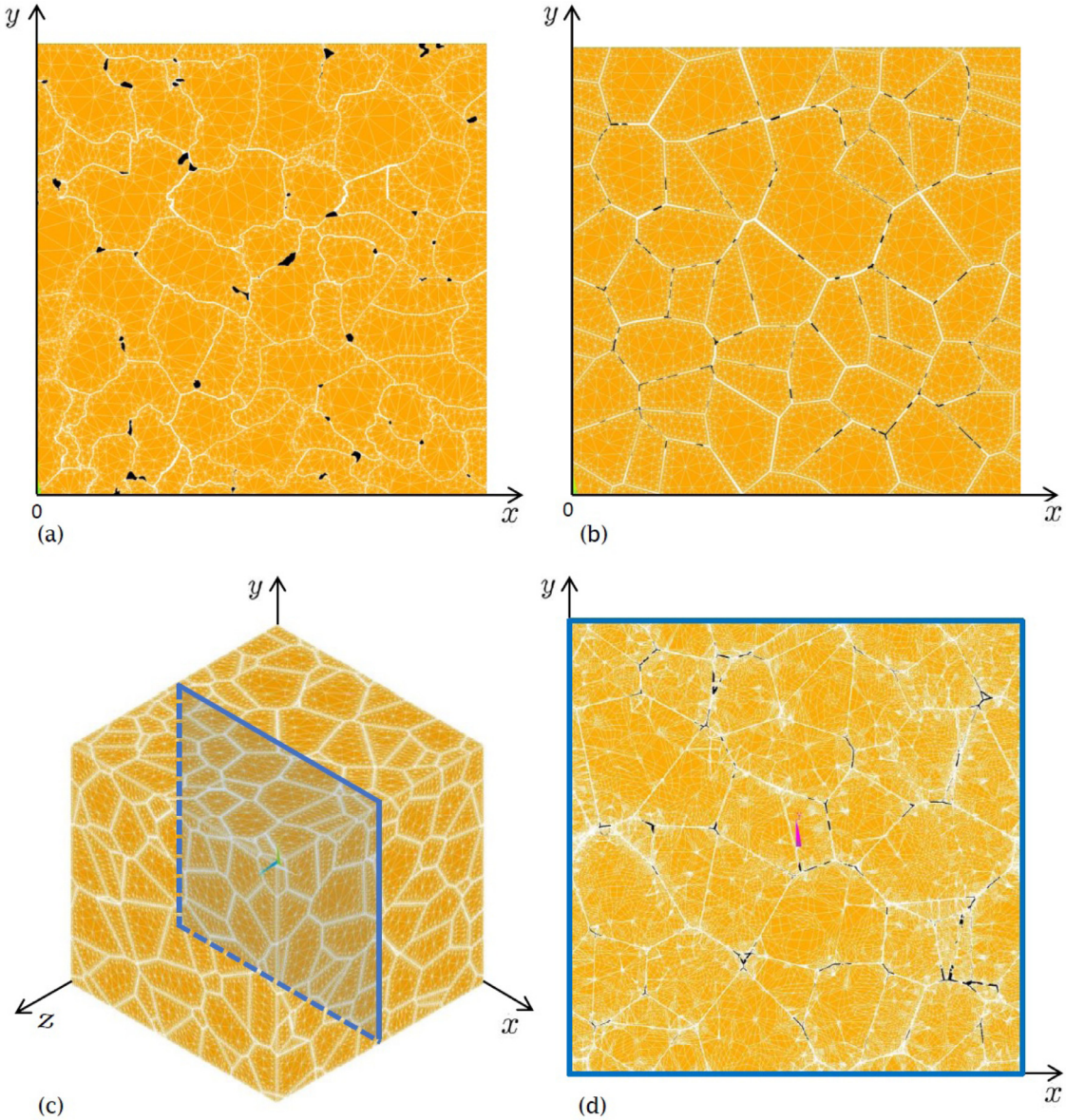


Fig. 9. The FE models of the cork-based composite PSF30: the DIB FE model (a), the 2D FE model (b), the 3D FE model (c) and its section view (d).

Table 8
Composition of the cork-based composite PSF30.

Property	Value
Cork volume fraction	96.67%
Matrix volume fraction	2.71%
Porosity volume fraction	0.62%
Diameter of the particles	0.5 mm and 1 mm
Particles of 0.5 mm	50%
Particles of 1 mm	50%

Table 10
Degree of symmetry of the DIB and the 2D FE model of the cork agglomerate PSF30.

Criterion	DIB FE-model	2D FE-model
(16)	0.9916	0.9694
(25)	0.5823	0.6083

Table 9
Average values of the effective elastic constants evaluated by using the DIB FE model, the 2D FE model and the 3D FE model for the cork agglomerate PSF30.

Effective elastic constants	DIB	2D	*PD**(DIB-2D)	3D	*PD**(DIB-3D)	*PD**(2D-3D)
$\bar{E}_x$ [MPa]	15.4546	15.3925	0.4017%	17.9538	16.1711%	16.6397%
$\bar{E}_y$ [MPa]	15.5848	15.8784	1.8839%	17.6389	13.1804%	11.0876%
$\bar{\nu}_{xy}$	0.2333	0.2383	2.1407%	0.2720	16.5950%	14.1513%
$\bar{G}_{xy}$ [MPa]	3.6490	3.7809	3.6150%	6.7937	78.2495%	79.6823%

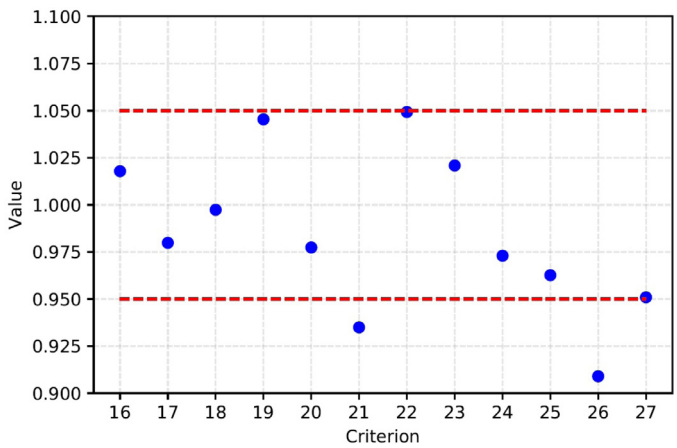


Fig. 10. Degree of symmetry of the 3D FE model of the cork agglomerate PSF30.

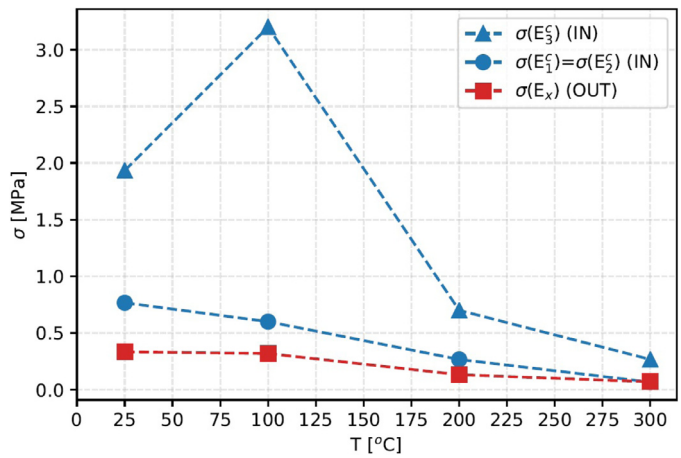


Fig. 12. $\sigma(E_x)$, $\sigma(E_1^c)=\sigma(E_2^c)$ and $\sigma(E_3^c)$ at different temperatures for the 2D case.

selected to describe the cork elastic properties uncertainty (at different temperatures); (b) a random sampling of the cork elastic properties is performed (for each temperature); (c) an homogenisation analysis is carried out (for each sample point and at different temperatures) to get the probabilistic distribution of the agglomerate equivalent elastic properties.

As far as the homogenisation analysis is concerned, at each temperature, after calculating $\sigma(x_i)$, according to Eq. (12), for each Young's modulus of the cork, the related normal distribution is evaluated and the MC algorithm is applied. A random sampling, using the Marsaglia's Polar method (Marsaglia and Bray, 1964), for each distribution is carried out for each cork particle composing the RVE (the overall number of cork particles is n_p). Then, E_3^c and $E_1^c=E_2^c$ are taken from the respective random samplings and collected into the vectors of

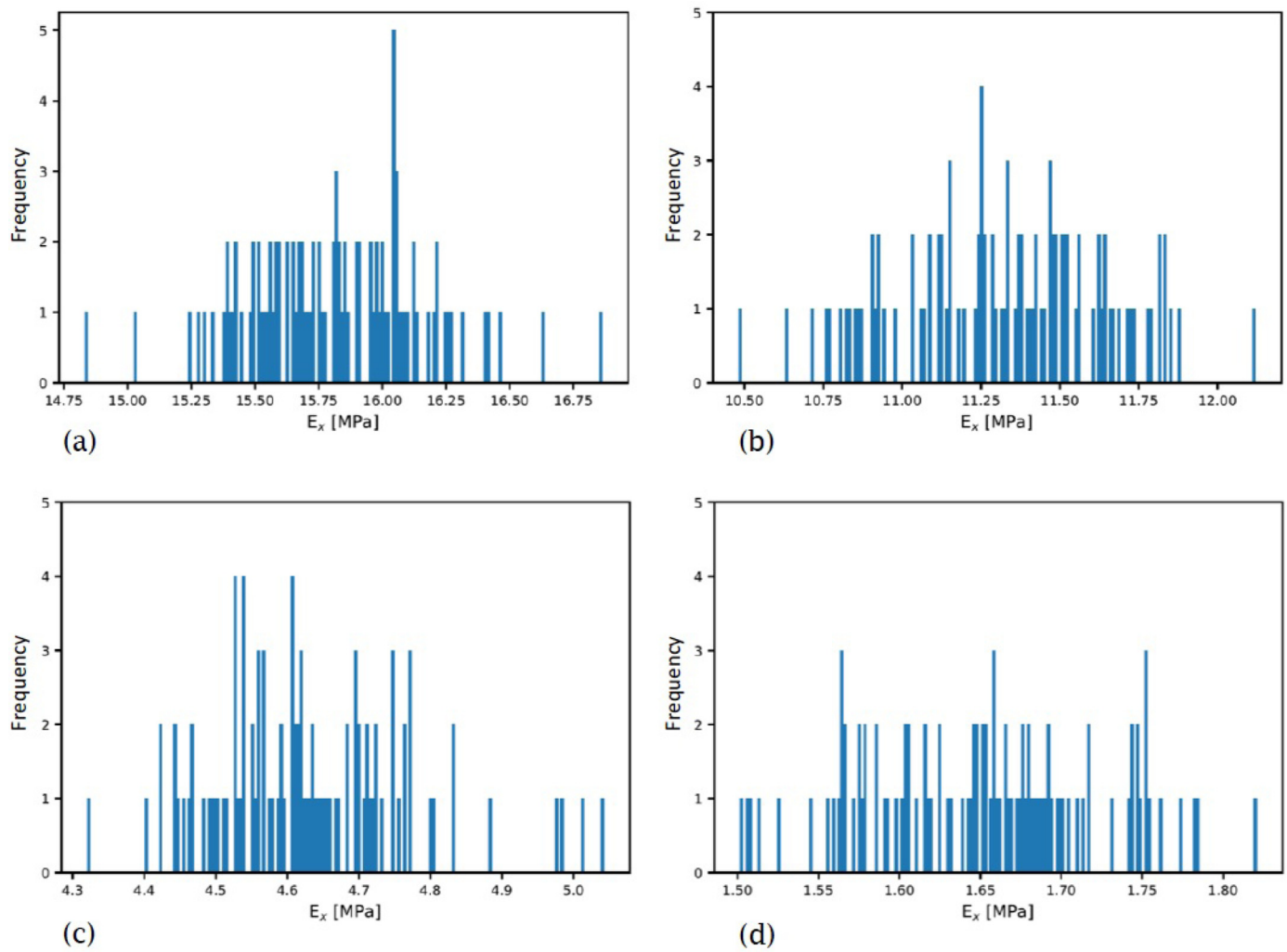


Fig. 11. Distribution of the values of the Young's modulus E_x at 25 (a), 100 (b), 200 (c) and 300 °C (d) for the 2D case.

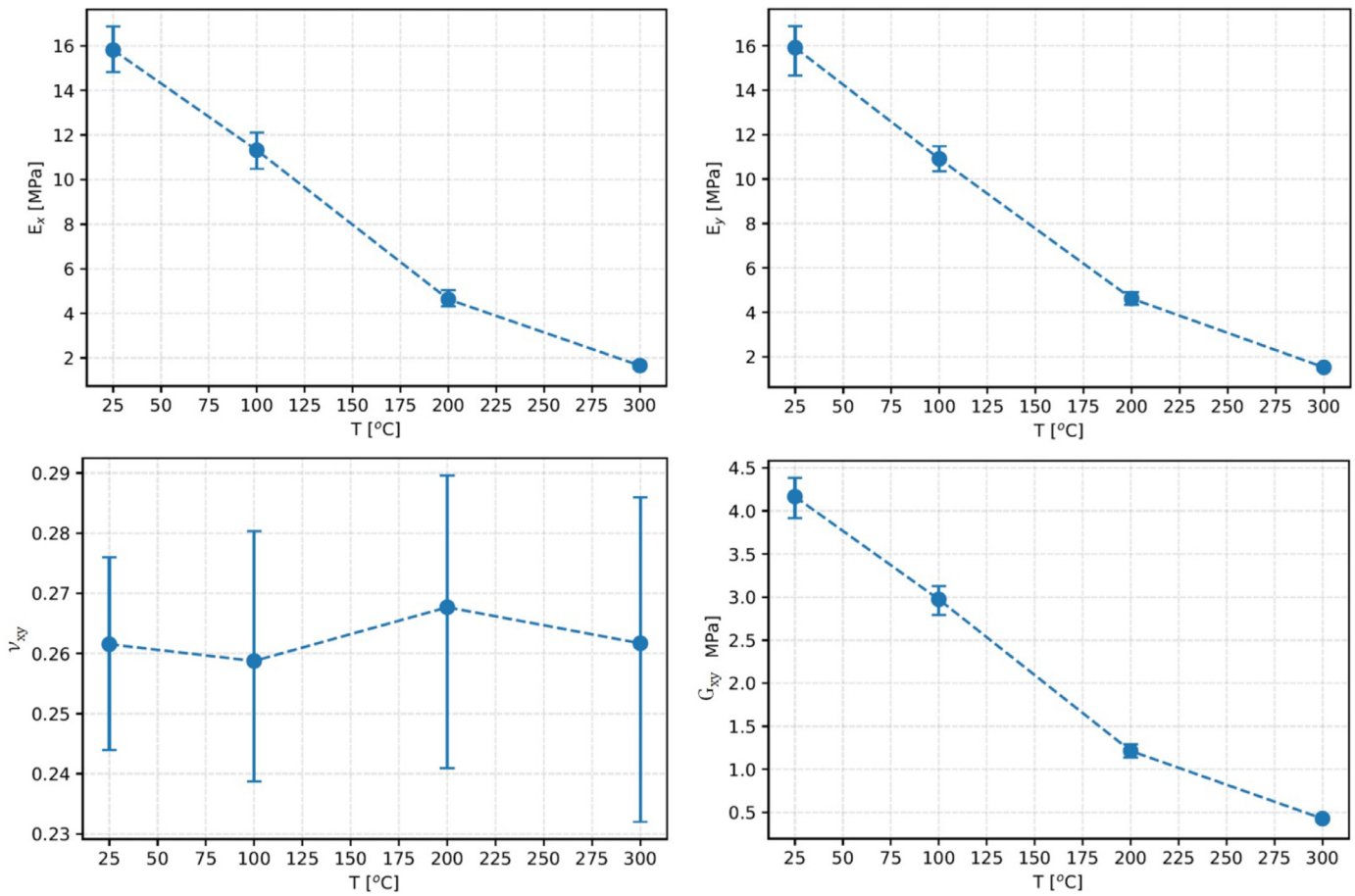


Fig. 13. Effective elastic constants at different temperatures resulting from the 2D FE model.

Table 11
Degree of symmetry at different temperatures of the 2D FE model of the agglomerate RVE.

Criterion	25 °C	100 °C	200 °C	300 °C
(16)	0.9936	1.0372	1.0008	1.0821
(27)	0.6645	0.6612	0.6654	0.6544

elastic constants v_i as follows

$$v_i = :\{E_1^c,\ E_2^c,\ E_3^c\},\ \ (i = 1, \cdots, n_p). \tag{13}$$

Taking into account transverse isotropy symmetry of natural cork, only independent elastic constants have been considered as input variables (i.e. as independent properties of the cork particles) to perform the homogenisation. More precisely, the considered independent elastic constants of cork particles are E_1^c, E_3^c, G_{13}^c, ν_{13}^c and ν_{12}^c. Among these constants those determined using the probability density function are the two moduli E_1^c and E_3^c.

Of course, the constitutive elastic properties cannot assume arbitrary values, but they have to fulfil a set of existence constraints (Cappelli et al., 2018) to guarantee the positive definiteness of the cork stiffness tensor:

$$\begin{aligned}
&g_1(x_i) = -E_1^c < 0,\\
&g_2(x_i) = -E_3^c < 0,\\
&g_3(x_i) = -G_{12}^c < 0,\\
&g_4(x_i) = |\nu_{13}^c| - \sqrt{\frac{E_1^c}{E_3^c}} < 0,\\
&g_5(x_i) = (\nu_{12}^c)^2 + \frac{E_3^c}{E_1^c}(2\cdot\nu_{12}^c\cdot(\nu_{13}^c)^2 + 2\cdot(\nu_{13}^c)^2) - 1 < 0.
\end{aligned} \tag{14}$$

In Eq. (14) the condition of positive definiteness of G_{13}^c is not included since it is automatically verified, see Table 2. Therefore, the random sampling of the cork Young's moduli has to meet the above inequality for each particle. Finally, the computational procedure illustrated in Fig. 2 is performed in order to generate the meso-structure of the RVE and to determine the effective elastic properties distributions of the composite at macroscopic scale.

5. Numerical results

5.1. Effectiveness of the multi-scale modeling strategy: comparison with a real agglomerate meso-structure

The effectiveness of the 2D FE model of the RVE, in terms of meso-structure geometry generation and its influence on the resulting equivalent elastic properties, is here evaluated. Firstly, starting from a digital image of a real meso-structure of the cork-based composite PNM20 (Fig. 6a), produced by the company Lièges HPK (Lige, 2020), a Digital-Image Based (DIB) geometry (Fig. 6c) is generated using the AutoCAD® software in order to build the DIB FE model of the real agglomerate (Fig. 6d). Then, the numerical homogenisation, presented in Section 2 is performed on the DIB FE model of Fig. 7(a) (which is referred as *reference model* in the following) under plane strain hypothesis, 10 times by considering different (random) orientations of the material frame of each cork particle. The resulting equivalent elastic properties provided by the reference model (which are averaged over the 10 analyses) are, hence, compared to those resulting from the numerical procedure, illustrated in Fig. 2, which is applied to 10 different virtual meso-structures of the agglomerate RVE (in both 2D and 3D cases, see Fig. 7(b-d)).

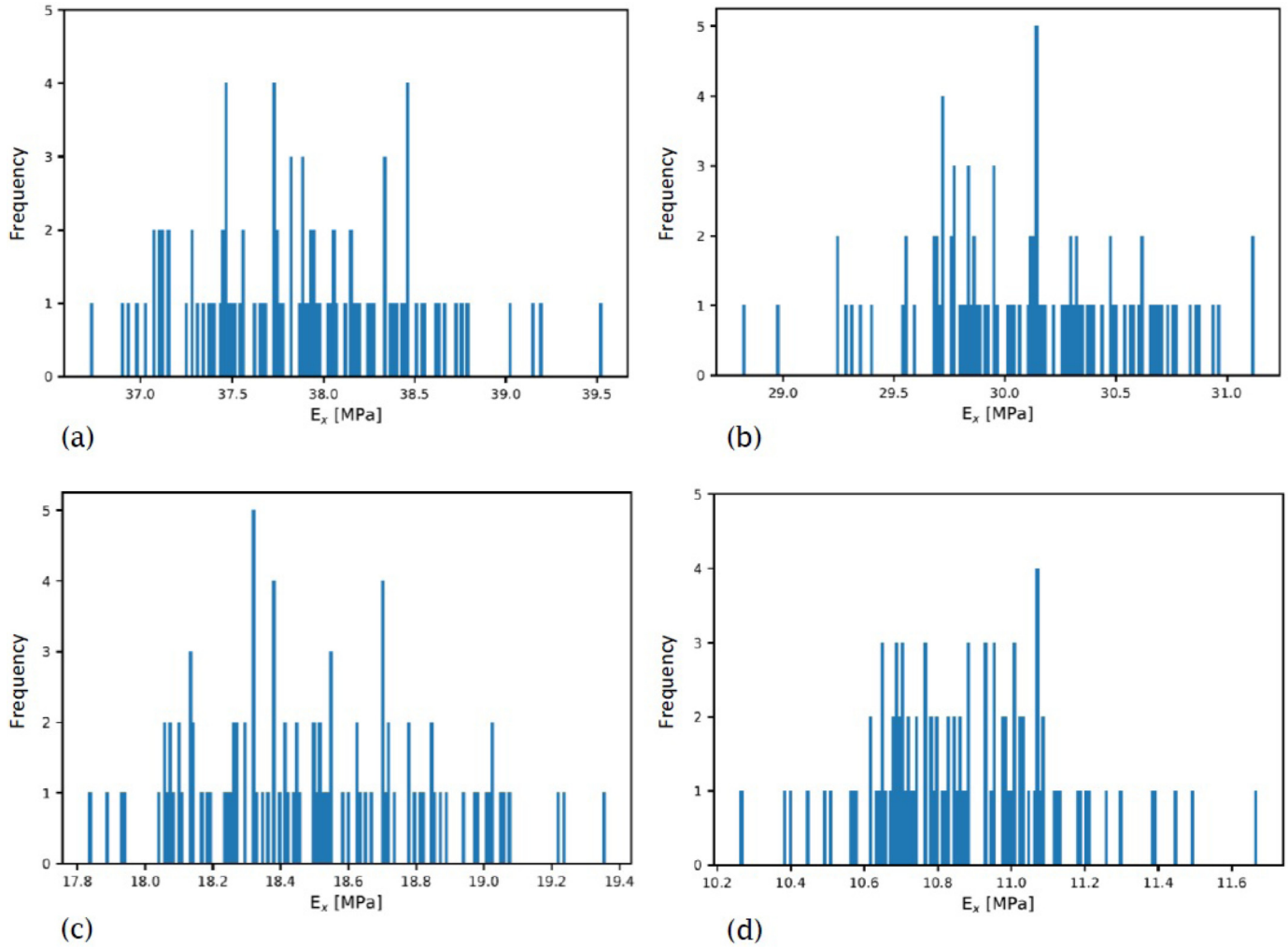


Fig. 14. Distribution of the values of the Young's modulus E_x at 25 °C (a), 100 °C (b), 200 °C (c) and 300 °C (d) for the 3D case.

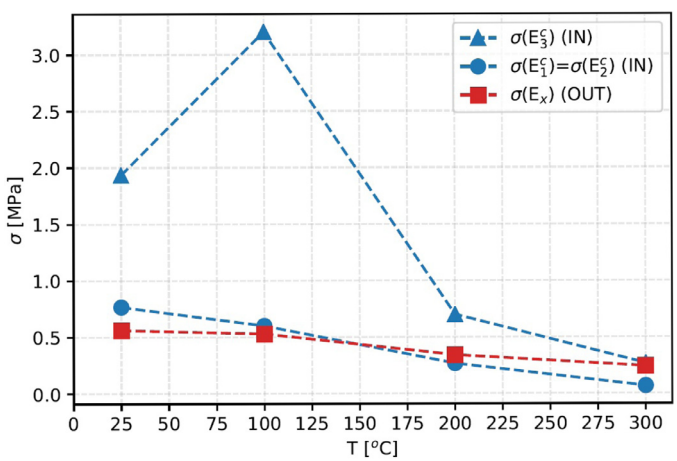


Fig. 15. $\sigma(E_x)$, $\sigma(E_1^c)=\sigma(E_2^c)$ and $\sigma(E_3^c)$ at different temperatures for the 3D case.

The composition of the PNM20 is given in Table 3, while the related material properties are listed in Table 4. Once the stiffness matrix **Q** (for 2D models), or **C** (for 3D models) is determined, the elastic constants of the homogenised medium are evaluated.

The average value of the nine elastic constants and the degree of symmetry of the resulting material are assessed by checking the criteria given in Table 5. As shown in Table 6, numerical results provided by both the reference model and the 2D artificial RVE are in very good agreement. Indeed, the difference varies between 0.04% (on the Poisson's ratio) to 2.5%. Conversely, the results provided by the 3D FE-model are considerably different from those resulting from the 2D analysis under plane strain hypothesis. In particular, difference on the equivalent elastic properties increases up to 74% for the shear modulus. This discrepancy is due to the triaxial state of stress and justify the need of the more accurate 3D model of the agglomerate RVE.

Furthermore, the degree of elastic symmetry of the resulting agglomerate has been evaluated. Adopting a tolerance interval of ± 0.05 on criteria (16)-(17), the 2D models exhibit a cubic symmetry, as reported in Table 7, while the elastic behaviour of the 3D FE model of the agglomerate is characterised by an orthotropic symmetry, as illustrated in Fig. 8.

The same analysis has been repeated by using a second specimen: the agglomerate PSF30 produced by Lièges HPK. The related DIB FE, the 2D FE model and the 3D FE model are shown in Fig. 9. The volume fraction of the components, the size of cork particles as well as the shape and size of the pores change with respect to the previous case: the agglomerate composition is given in Table 8. On the other hand, the elastic properties of the constituents remain the same (Table 4).

The numerical results for this second case study, listed in Table 9, lead to the same conclusions as in the case of the PNM20 agglomerate. It should be pointed out that, even if the cork volume fraction of PNM20 and PSF30 is very similar, the difference in matrix and porosity volume fractions has a considerable influence on resulting elastic moduli of the two agglomerates, see Tables 6 and 9. Indeed, in cork-based agglomerates (due to the considerable difference between elastic properties of

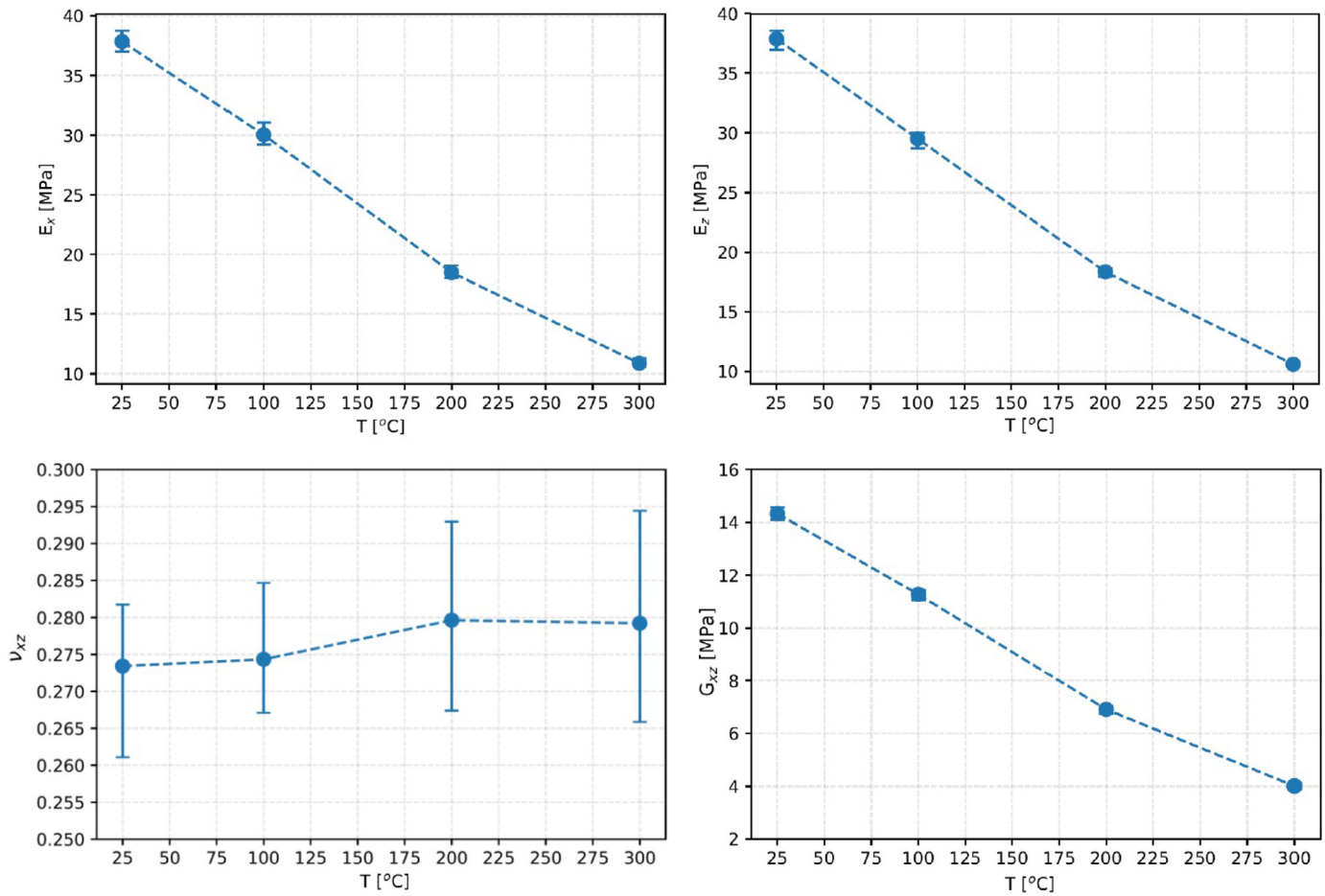


Fig. 16. Effective elastic constants E_x, E_z, ν_{xy} and G_{xz} at different temperatures resulting from the 3D FE model.

cork and the resin) the volume fraction of the resin plays an important role in the global stiffness, even at very small values.

In this second study, the largest percentage differences (2.1% and 3.6%) between results provided by the DIB FE model and the 2D FE model are related to the Poisson's ratio and the shear modulus. On the other hand, the difference between the results from 2D and 3D models is still high. In particular, as in the previous case, the percentage difference on the equivalent elastic properties increases up to 80% for the shear modulus. The degree of elastic symmetry of the resulting material has been evaluated too. The homogenised elastic behaviour resulting from the 2D models exhibits a cubic symmetry, as shown from results listed in Table 10, while for the 3D case, the homogenised composite exhibits an orthotropic symmetry, as illustrated in Fig. 10.

5.2. Variability analysis of the equivalent temperature-dependent elastic properties

In this subsection, the equivalent, temperature-dependent elastic behaviour of the cork-based composite is assessed, by considering the uncertainty of the cork elastic properties.

The probabilistic homogenisation strategy presented in Section 4 is here applied on a realistic configuration of the cork-based composite PSF30, whose composition is reported in Table 8. The elastic properties of the components, at four different temperatures, are listed in Table 2. The effective properties of the cork agglomerate have been determined using both 2D and 3D FE models. In order to get statistically representative results, the probabilistic homogenisation method is carried out 100 times, for each temperature, for both 2D and 3D FE models.

5.2.1. Numerical results: 2D FE model

For the 2D case the square RVE of the agglomerate has a side L = 170 mm. The RVE size (Kanit et al., 2003) has been selected as a result of a sensitivity analysis (not reported here for the sake of brevity). The equivalent elastic properties of the agglomerate, at each temperature, are distributed according to a normal distribution, showing almost the same shape as the distribution of the Young's moduli of natural cork. For the sake of brevity, only the Young's modulus E_x distribution, at different temperatures, is illustrated in Fig. 11.

It is noteworthy that the standard deviation of E_x decreases when temperature increases (according to natural cork trends), as shown in Fig. 12. However, the variability in elastic properties of cork-based composites is lower than that affecting the elastic properties of the natural cork especially at low temperatures, e.g. at 100 °C the percentage differences between $\sigma(E_x)$ and $\sigma(E_3^c)$ and $\sigma(E_1^c) = \sigma(E_2^c)$ are 904% and 88%, respectively. At high temperatures these differences are less pronounced but, in any case, $\sigma(E_x)$ is always lower than $\sigma(E_3^c)$ and $\sigma(E_1^c) = \sigma(E_2^c)$. In particular, the minimum percentage differences are reached at 300 °C. This result is of paramount importance: the cork agglomerate exhibits a more stable elastic behaviour than the natural cork one. This aspect is of outstanding importance for those industrial applications which require stability and small variability in the material properties. As illustrated in Fig. 13, the greater the temperature the lower the value of the equivalent elastic properties of the agglomerate, according to natural cork behaviour. Finally, the degree of symmetry of the composite has been evaluated by considering the mean values of the distributions. For the 2D case, the homogenised material always shows a cubic symmetry except at the temperature of 300 °C where it exhibits an orthotropic behaviour as reported in Table 11.

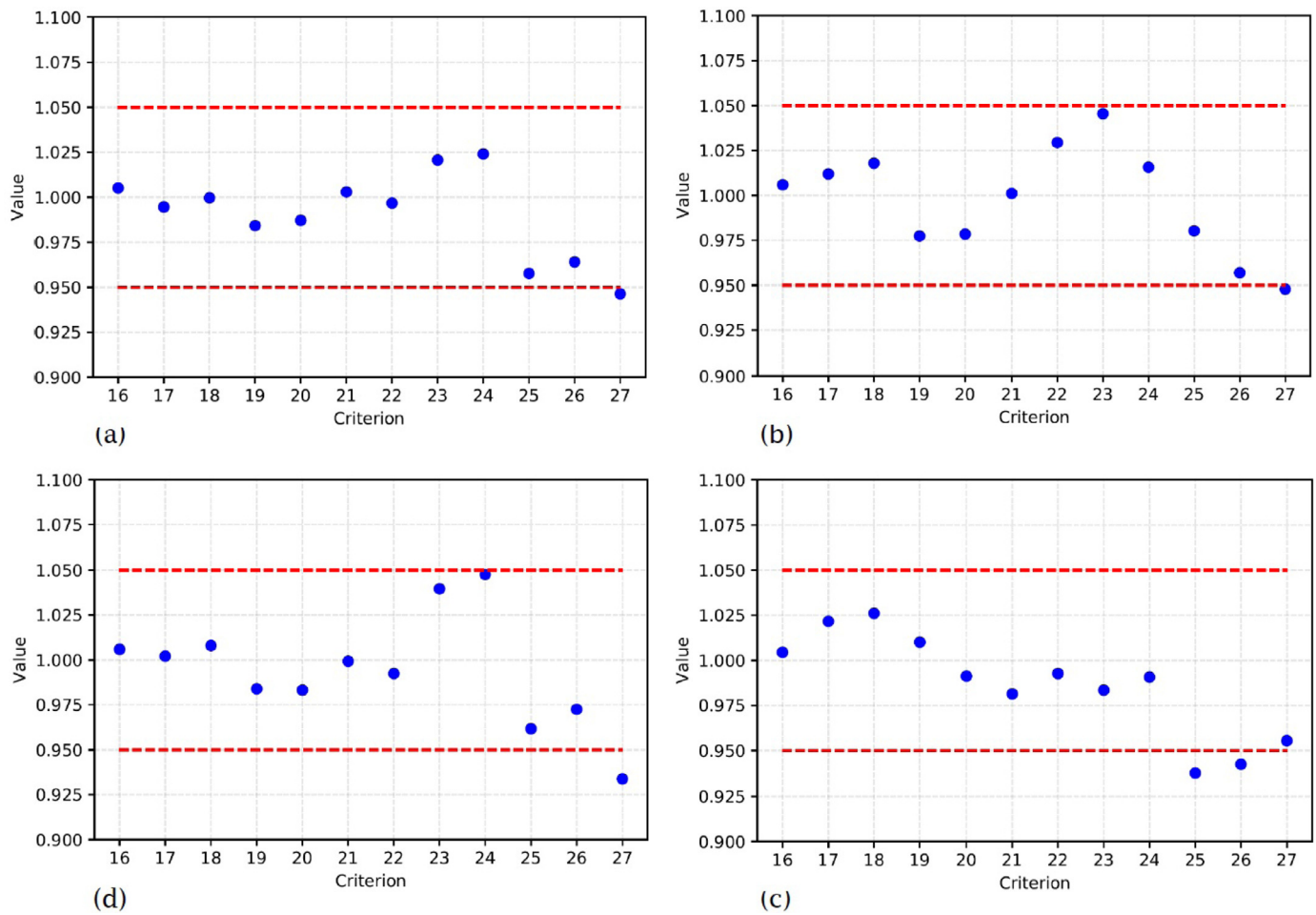


Fig. 17. Degree of symmetry of the agglomerate at 25 °C (a), 100 °C (b), 200 °C (c) and 300 °C (d) obtained by using the 3D FE model.

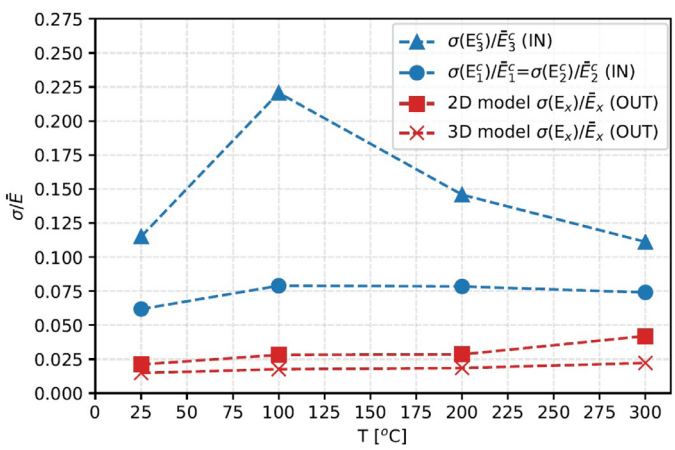


Fig. 18. $\sigma(E_x)/\overline{E}_x$, $\sigma(E_1^c)/\overline{E}_1^c = \sigma(E_2^c)/\overline{E}_2^c$, $\sigma(E_3^c)/\overline{E}_3^c$ at different temperatures for the 3D case.

5.2.2. Numerical results: 3D FE model

In this case, the numerical analysis has been conducted on a cubic RVE of the agglomerate of side $L = 216$ mm. Also in this case, the RVE size has been chosen as a result of a sensitivity study (not reported here for the sake of brevity). As for the 2D case, the equivalent elastic properties of the agglomerate are distributed according to a normal distribution. For the sake of brevity, only the distribution of E_x, at different temperatures, is illustrated in Fig. 14.

The comparison between the standard deviation of the inputs (E_3^c and $E_1^c = E_2^c$) and of the output (E_x of composite) leads to the same conclusions made for the 2D case. However, in the 3D case, the $\sigma(E_x)$ is more stable at the different temperatures, as shown in Fig. 15, e.g. at 100 °C the percentage differences among $\sigma(E_x)$ and $\sigma(E_3^c)$ and $\sigma(E_1^c) = \sigma(E_2^c)$ are 505% and 13%, respectively. Furthermore, at high temperatures $\sigma(E_x)$ is greater than $\sigma(E_1^c) = \sigma(E_2^c)$, reaching a maximum of 72% at 300 °C, but it is always lower than $\sigma(E_3^c)$.

The values of the effective elastic constants for 3D case, shown in Fig. 16, lead to the same remarks made for the 2D case: the greater the temperature the lower the agglomerate stiffness. Finally, for the 3D case the composite exhibits a cubic symmetry at all temperatures, as shown in Fig. 17.

5.2.3. General remarks

The temperature-dependent effective elastic properties of cork-based composites tend to be distributed according to a normal distribution with a standard deviation lower than that of the elastic properties of cork particles, especially for the 2D case (a percentage difference ranging from 904% to 1%). Therefore, cork agglomerates show less variability in elastic properties than that affecting the natural cork. Furthermore, the stiffness of the agglomerate decreases with the temperature, in agreement with the behaviour of the natural cork. In Fig. 18 standard deviation-to-mean value ratio of elastic moduli is depicted as function of the temperature. The difference of variability properties between elastic moduli of cork-based composites and natural cork are highlighted. More precisely the trend of $\sigma/\overline{E}$ curves of the agglomerate are qualitatively the same for 2D/3D models and natural cork (along tangential and axial directions) but considerably shifted towards low values with respect to natural cork curves. Moreover, when

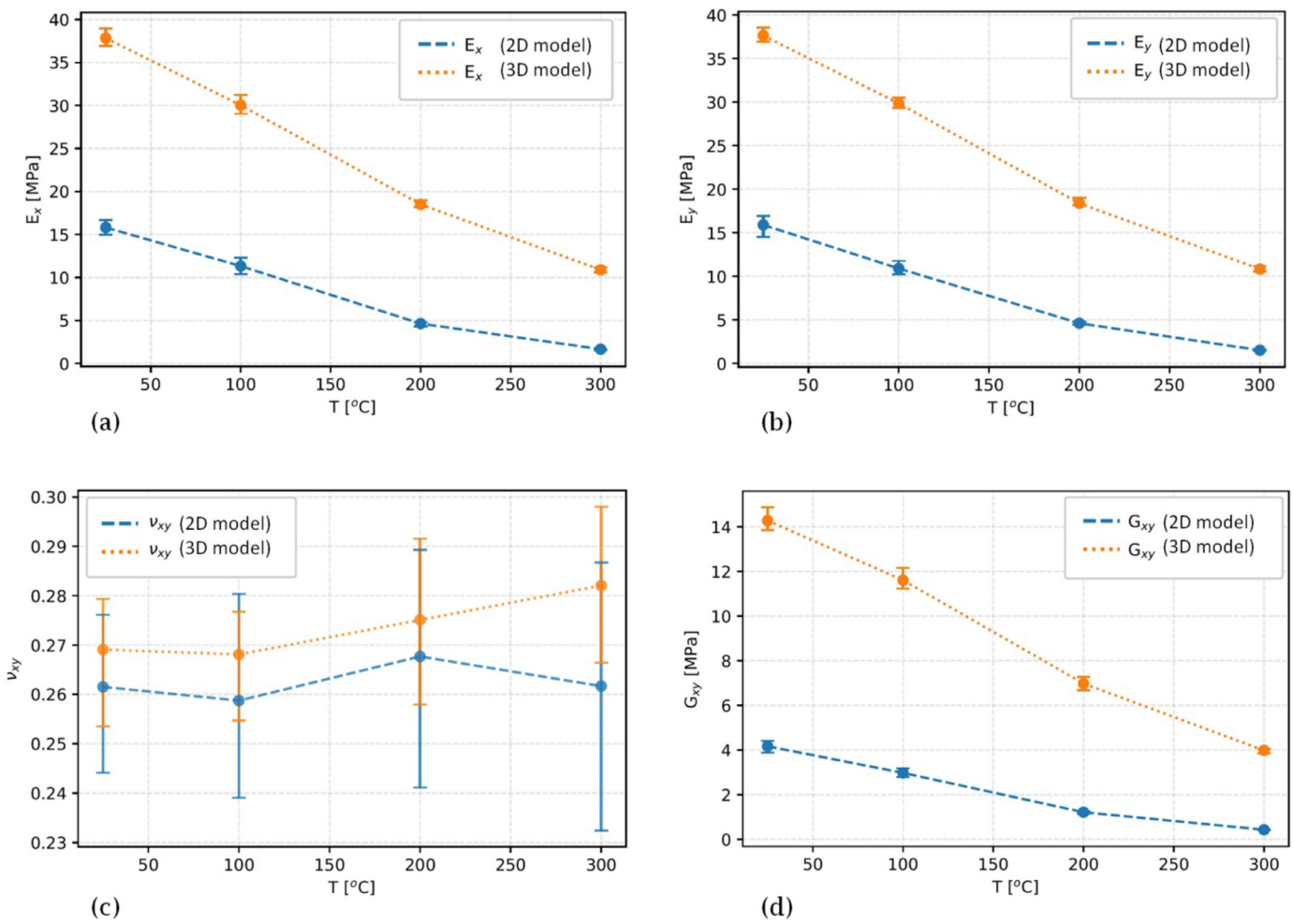


Fig. 19. Effective elastic constants at different temperatures resulting from the 2D and the 3D FE models.

comparing the effective elastic constants provided by the 2D FE model and the 3D FE model (Fig. 19), it can be inferred that the variation with the temperature is almost the same except for the Poisson's ratio. This difference is mainly due to the higher compliance of the 2D model, compared to the 3D one, which leads to a more pronounced Poisson effect. Furthermore, the difference in Young's moduli between the two models tends to reduce when temperature increases.

6. Conclusions

In this work, a numerical homogenisation strategy based on a stochastic approach for predicting the temperature-dependent effective properties of cork-based composites has been developed. The proposed approach is based on: (a) an in-house code for the generation of a realistic meso-structure of the cork-based composite; (b) a very general homogenisation method based on the strain energy of periodic media; (c) the MC algorithm to perform the statistical analyses. In particular, the algorithm initially presented in Delucia et al. (2019) has been improved in order to generate a realistic agglomerate meso-structure, characterised by concave cork particles and pores.

Firstly, the effectiveness of the modelling strategy has been checked by comparing the equivalent elastic properties resulting from artificial meso-structures to those resulting from a real agglomerate meso-structure (obtained through digital image based technique). The numerical results highlight that both 2D and 3D FE models are able to reproduce properly the meso-structure of cork agglomerates. On the other hand, the use of the more accurate 3D FE model allows taking into account for the state of triaxial stress and the true polyhedral geometry of the cork particles.

Subsequently, the influence of the cork particle elastic properties variability on the temperature-dependent effective elastic properties of the agglomerate has been investigated. Normal probability density functions have been used to represent the natural cork elastic moduli uncertainty and the MC algorithm is used to propagate uncertainty through the problem scales. In this way, the variability of cork material properties has been introduced into the homogenisation process and its effect on the macroscopic elastic behaviour of the agglomerate has been studied. Numerical results show that the distribution of the agglomerate effective elastic constants is very close to a normal distribution with a considerably reduced standard deviation when compared to the variability affecting the elastic properties of the cork. This means that when the natural cork is combined with an epoxy resin to form an agglomerate, the variability of the elastic response of the resulting composite is significantly lower than that affecting the cork properties. As far as perspectives of this work are concerned, research is ongoing on the integration of (a) the non-linear thermomechanical behaviour of the constitutive phases and (b) the influence of the pre-stresses (and the related variability) due to manufacturing process (e.g. compression moulding) into the multi-scale modelling strategy.

CRediT authorship contribution statement

Marco Delucia: Software, Investigation, Methodology, Writing - original draft. **Anita Catapano:** Conceptualization, Methodology, Validation, Writing - original draft, Writing - review & editing, Supervision, Funding acquisition. **Marco Montemurro:**

Conceptualization, Methodology, Writing - review & editing, Supervision. **Jérôme Pailhés:** Writing - review & editing, Supervision.

Declaration of Competing Interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Acknowledgements

The first author is grateful to the Nouvelle-Aquitaine region, Liéges HPK and SAFRAN Power Units for their contribution to this paper through the LIAMA project.

Supplementary material

Supplementary material associated with this article can be found, in the online version, at 10.1016/j.mechmat.2020.103399.

References

Anjos, O., Pereira, H., Rosa, M.E., 2008. Effect of quality, porosity and density on the compression properties of cork. Holz als Roh - und Werkstoff 66 (4), 295–301. https://doi.org/10.1007/s00107-008-0248-2.

Anjos, O., Pereira, H., Rosa, M.E., 2010. Tensile properties of cork in the tangential direction: variation with quality, porosity, density and radial position in the cork plank. Mater. Des. 31 (4), 2085–2090. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2009.10.048.

Anjos, O., Pereira, H., Rosa, M.E., 2011. Characterization of radial bending properties of cork. Eur. J. Wood Wood Prod. 69 (4), 557–563. https://doi.org/10.1007/s00107-010-0516-9.

Anjos, O., Rodrigues, C., Morais, J., Pereira, H., 2014. Effect of density on the compression behaviour of cork. Mater. Des. 53, 1089–1096. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.07.038.

Barbero, E.J., 2013. Finite Element Analysis of Composite Materials Using Ansys. CRC Press.

Bertolino, G., Montemurro, M., De Pasquale, G., 2019. Multi-scale shape optimisation of lattice structures: an evolutionary-based approach. Int. J. Interact. Des. Manuf. 13, 1565–1578. https://doi.org/10.1007/s12008-019-00580-9.

Broadbent, T.A.A., Einstein, A., Hertz, H., Dryden, H.L., Murnaghan, F.P., Bateman, H., 1957. Investigations on the theory of the Brownian movement. Math. Gazette 41 (337), 231. https://doi.org/10.2307/3609228.

Budiansky, B., 1965. On the elastic moduli of some heterogeneous materials. J. Mech. Phys. Solids 13 (4), 223–227. https://doi.org/10.1016/0022-5096(65)90011-6.

Cappelli, L., Balokas, G., Montemurro, M., Dau, F., Guillaumat, L., 2019. Multi-scale identification of the elastic properties variability for composite materials through a hybrid optimisation strategy. Compos. Part B 176, 107–193. https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2019.107193.

Cappelli, L., Montemurro, M., Dau, F., Guillaumat, L., 2018. Characterisation of composite elastic properties by means of a multi-scale two-level inverse approach. Compos. Struct. 204, 767–777. https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2018.08.007.

Cappelli, L., Montemurro, M., Dau, F., Guillaumat, L., 2019. Multi-scale identification of the viscoelastic behaviour of composite materials through a non-destructive test. Mech. Mater. 137, 103–137. https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2019.103137.

Catapano, A., Jumel, J., 2015. A numerical approach for determining the effective elastic symmetries of particulate-polymer composites. Compos. Part B 78, 227–243. https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2015.03.085.

Catapano, A., Montemurro, M., 2014. A multi-scale approach for the optimum design of sandwich plates with honeycomb core. Part I: homogenisation of core properties. Compos. Struct. 118 (1), 664–676. https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2014.07.057.

Delucia, M., Catapano, A., Montemurro, M., Pailhs, J., 2019. Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates. J. Reinf. Plast. Compos. 38 (16), 760–776. https://doi.org/10.1177/0731684419846991.

Einstein, A., 1905. Über die von der molekularkinetischen theorie der wärme geforderte bewegung von in ruhenden flüssigkeiten suspendierten teilchen. Ann. Phys. 322 (8), 549–560. https://doi.org/10.1002/andp.19053220806.

Eshelby, J.D., 1957. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclution and related problems. Proc. Phys. Soc. Lond. Ser. A 241, 376–396. https://doi.org/10.1098/rspa.1983.0054.

Fernandino, D., Cisilino, A., Boeri, R., 2015. Determination of effective elastic properties of ferritic ductile cast iron by computational homogenization, micrographs and microindentation tests. Mech. Mater. 83, 110–121. https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2015.01.002.

Gibson, L.J., Easterling, K.E., Ashby, M.F., 1981. The structure and mechanics of cork. Proc. R. Soc. A 377 (1769), 99–117. https://doi.org/10.1098/rspa.1981.0117.

Gil, L., 2009. Cork composites: a review. Materials 2 (3), 776–789. https://doi.org/10.3390/ma2030776.

Hashin, Z., Shtrikman, S., 1963. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. J. Mech. Phys. Solids 11 (2), 127–140. https://doi.org/10.1016/0022-5096(63)90060-7.

Hill, R., 1965. A self-consistent mechanics of composite materials. J. Mech. Phys. Solids 13 (4), 213–222. https://doi.org/10.1016/0022-5096(65)90010-4.

De Castro San Román, J., 2005. Experiments on Epoxy, Polyurethane and ADP Adhesives. Appendix A - Technical Report n° CCLab2000.1b/1, CCLAB, Ecole Polytechnique Federale de Losanne.Experiments on Epoxy, Polyurethane and ADP Adhesives. Appendix A - Technical Report n° CCLab2000.1b/1, CCLAB, Ecole Polytechnique Federale de Losanne.

Jardin, R., Fernandes, F., Pereira, A., Alves de Sousa, R., 2015. Static and dynamic mechanical response of different cork agglomerates. Mater. Des. 68, 121–126. https://doi.org/10.1016/j.matdes.2014.12.016.

Kamiński, M., 2013. The Stochastic Perturbation Method for Computational Mechanics. John Wiley & Sons Inc.https://doi.org/10.1002/9781118481844.

Kamiński, M., Kleiber, M., 2000. Perturbation based stochastic finite element method for homogenization of two-phase elastic composites. Comput. Struct. 78 (6), 811–826. https://doi.org/10.1016/S0045-7949(00)00116-4.

Kanit, T., Forest, S., Galliet, I., Mounoury, V., Jeulin, D., 2003. Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. Int. J. Solids Struct. 40 (13), 3647–3679. https://doi.org/10.1016/S0020-7683(03)00143-4.

Kim, S., 2011. A Study on Cork-Based Plastic Composite Material. Master's thesis. Massachusetts Institute of Technology.

Landau, D.P., Binder, K., 2014. A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics, fourth ed. Cambridge University Presshttps://doi.org/10.1017/CBO9781139696463.

Lielens, G., Pirotte, P., Couniot, A., Dupret, F., Keunings, R., 1998. Prediction of thermo-mechanical properties for compression moulded composites. Compos. Part A 29 (1–2), 63–70. https://doi.org/10.1016/S1359-835X(97)00039-0.

Lige HPK, 2020. . http://www.lieges-hpk.com/fr/(Last accessed: -01-03)

Liu, Z., Guan, Z., Liu, F., Xu, J., 2017. Time-temperature dependent mechanical properties of cured epoxy resin and unidirectional CFRP. 2017 8th International Conference on Mechanical and Aerospace Engineering, ICMAE 2017. https://doi.org/10.1109/ICMAE.2017.8038626.

Lopes, M.H., Barros, A.S., Pascoal Neto, C., Rutledge, D., Delgadillo, I., Gil, A.M., 2001. Variability of cork from portuguese quercus suber studied by solid-state (13)C-NMR and FTIR spectroscopies. Biopolymers 62 (5), 268–277. https://doi.org/10.1002/bip.1022.

Marsaglia, G., Bray, T.A., 1964. A convenient method for generating normal variables. SIAM Rev. 6 (3), 260–264. https://doi.org/10.1137/1006063.

Montemurro, M., Catapano, A., Doroszewski, D., 2016. A multi-scale approach for the simultaneous shape and material optimisation of sandwich panels with cellular core. Compos. Part B 91, 458–472. https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2016.01.030.

Mori, T., Tanaka, K., 1973. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. Acta Metall. 21 (5), 571–574. https://doi.org/10.1016/0001-6160(73)90064-3.

Oliveira, V., Rosa, M.E., Pereira, H., 2014. Variability of the compression properties of cork. Wood Sci. Technol. 48 (5), 937–948. https://doi.org/10.1007/s00226-014-0651-2.

Pereira, H., 2007. Cork: Biology, Production and Uses. Elsevierhttps://doi.org/10.1016/B978-0-444-52967-1.X5000-6.

Pereira, H., 2013. Variability of the chemical composition of cork. BioResources 8 (2), 2246–2256. https://doi.org/10.15376/biores.8.2.2246-2256.

Refai, K., Montemurro, M., Brugger, C., Santier, N., 2019. Determination of the effective elastic properties of titanium lattice structures. Mech. Adv. Mater. Struct. https://doi.org/10.1080/15376494.2018.1536816.

Reuss, A., 1929. Berechnung der fließgrenze von mischkristallen auf grund der plastizitätsbedingung für einkristalle. Z. Angew. Math. Mech. 9 (1), 49–58. https://doi.org/10.1002/zamm.19290090104.

Rosa, M.E., Fortes, M.A., 1988. Temperature-induced alterations of the structure and mechanical properties of cork. Mater. Sci. Eng. 100, 69–78. https://doi.org/10.1016/0025-5416(88)90240-6.

Sadd, M., 2009. Elasticity: Theory, Applications, and Numerics. Academic Presshttps://doi.org/10.1016/B978-0-12-374446-3.

Sakata, S., Ashida, F., Kojima, T., Zako, M., 2008. Three-dimensional stochastic analysis using a perturbation-based homogenization method for elastic properties of composite material considering microscopic uncertainty. Int. J. Solids Struct. 45 (3), 894–907. https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2007.09.008.

Santos, P.T., Pinto, S., Marques, P.A., Pereira, A.B., Alves de Sousa, R.J., 2017. Agglomerated cork: a way to tailor its mechanical properties. Compos. Struct. 178, 277–287. https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2017.07.035.

Santos, T., Amaral, J., Costa, V., Amaral, V., 2017. Thermal conductivity of agglomerate cork. Materials Research Proceedings. 3. pp. 1–10. https://doi.org/10.21741/9781945291418-1.

Savvas, D., Stefanou, G., Papadrakakis, M., Deodatis, G., 2014. Homogenization of random heterogeneous media with inclusions of arbitrary shape modeled by XFEM. Comput. Mech. 54, 1221–1235. https://doi.org/10.1007/s00466-014-1053-x.

Spanos, P.D., Kontsos, A., 2008. A multiscale monte carlo finite element method for determining mechanical properties of polymer nanocomposites. Probab. Eng. Mech. 23 (4), 456–470. https://doi.org/10.1016/j.probengmech.2007.09.002.

Stefanou, G., Savvas, D., Papadrakakis, M., 2017. Stochastic finite element analysis of composite structures based on mesoscale random fields of material properties. Comput. Methods Appl. Mech. Eng. 326, 319–337. https://doi.org/10.1016/j.cma.2017.08.002.

Voigt, W., 1889. Ueber die Beziehung zwischen den beiden elasticitatsconstanten isotroper korper. Ann. Phys. 274 (12), 573–587. https://doi.org/10.1002/andp.18892741206.

Zhou, X.Y., Gosling, P.D., Pearce, C.J., Kaczmarczyk, L., Ullah, Z., 2016. Perturbation-based stochastic multi-scale computational homogenization method for the determination of the effective properties of composite materials with random properties. Comput. Methods Appl. Mech. Eng. 300, 84–105. https://doi.org/10.1016/j.cma.2015.10.020.

Chapitre 4

Évaluation de l'état de pré-contrainte par simulation du processus de moulage par compression

L'article *Pre-stress state in cork agglomerates: simulation of the compression moulding process*, présenté dans ce chapitre, a été publié dans la revue internationale *International Journal of Material Forming* (Delucia et al. 2021). Il traite du développement d'une stratégie de modélisation pour prédire l'état de précontrainte des agglomérés de liège fabriqués au moyen du procédé de moulage par compression.
Comme décrit au Chapitre 1, le processus de fabrication utilisé par la société Lièges HPK est le moulage par compression. La compression appliquée au mélange de liège et résine, avant de réaliser la phase de durcissement, induit un état de pré-contrainte à l'intérieur du matériau qui va influencer le comportement final de l'agglomméré.
Dans le but de déterminer cet état de pré-contrainte dans l'agglomméré, l'approche proposée est basée sur une simulation de la phase de remplissage du moule suivie d'une phase de compression. Un code *ad-hoc*, couplé à un moteur physique 2D, a été développé sur Python pour prédire, dans une première phase, la disposition géométrique des particules de liège qui tombent dans un moule. Une fois défini l'arrangement géométrique de départ des particules, le modèle EF du granulé et du moule est généré. Enfin, la phase de compression est simulée via un solveur dynamique explicite.
Trois classes de densité de liège naturel (faible, moyenne et haute densité) et deux configurations d'agglomméré (haute et faible densité obtenues via un choix opportun des tailles des particules) ont été simulées. Le modèle de comportement à cinq termes de Mooney-Rivlin a été utilisé pour simuler le comportement mécanique hyperélastique du liège en compression.
Les courbes contrainte-déformation et densité-déformation, dépendantes du temps, ont été évaluées pour les cas étudiés. Pour chaque cas d'étude, le module tangent de l'agglomméré a été comparé à celui du liège naturel, à la même déformation appliquée. Les résultats montrent que le module tangent de l'agglomméré, dans la configuration à haute densité apparente, est toujours supérieur à celui de l'agglomméré dans la configuration à faible densité apparente et, à la fin de la phase de compression, est également supérieur à celui du liège naturel. Ce résultat montre qu'on peut obtenir une rigidité plus élevée de l'agglomméré final, par rapport à celle du liège naturel, en choisissant, dans la phase de conception, une distribution opportune de tailles de particules du granulé.

International Journal of Material Forming (2021) 14:485–498
https://doi.org/10.1007/s12289-021-01623-x

ORIGINAL RESEARCH

Pre-stress state in cork agglomerates: simulation of the compression moulding process

Marco Delucia[1] · Anita Catapano[2] · Marco Montemurro[1] · Jérôme Pailhès[1]

Received: 2 February 2021 / Accepted: 19 March 2021 / Published online: 8 April 2021
© The Author(s), under exclusive licence to Springer-Verlag France SAS, part of Springer Nature 2021

Abstract

In the present work, a physically-based finite element model simulating the compression moulding process of cork-based agglomerates is presented. The goal is the prediction of the pre-stress state due to the process and its influence on the macroscopic mechanical properties of the agglomerate. An *ad-hoc* algorithm simulating the mould filling phase (based on a generalised Voronoi's tesselation algorithm which is paired with a 2D physics engine) as well as the moulding compression phase is presented. A numerical campaign is conducted to show the effectiveness of the modelling strategy and to assess the influence of packing density on the behaviour of the agglomerate. For all considered cases, the stress-strain and time dependent density curves of the agglomerate show that a high packing density configuration, resulting from a proper selection of particles size mixing, allows obtaining higher tangent moduli than that of natural cork with a lower material density.

Keywords Cork agglomerates · Compression moulding · Particles drop simulation · Mould filling · Physics engine · Finite element method

Introduction

Selection phase of natural resources for the production of industrial goods and the reduction of waste play a key role in the global environmental challenge. Nowadays, more and more industries are engaged in reducing consumption of non-renewable resources and inauspicious environmental effects due to human actions by adopting sustainable approaches.

Extracted periodically in a sustainable manner (usually every nine years), from the outer bark of *Quercus Suber L.*, cork is a renewable, recyclable and high-performance natural resource that makes it very useful for many industrial applications in view of a sustainable manufacturing. Its closed-cell honeycomb microstructure and its chemical composition (the suberin and the lignin are the two main components) make cork a light material (density varies between 120 and 240 kg/m^3) impermeable to gases and liquids with remarkable thermal and acoustic insulation properties and good damping capabilities [30]. From a mechanical point of view, cork exhibits very early a non-linear behaviour in compression which is typical of cellular materials: the stress-strain curve is characterised by a small linear elastic region (up to ∼5% of normal strains), followed by a large plateau region (up to ∼50% of normal strains), corresponding to the progressive buckling of cell walls, until their collapse at high strains (up to ∼70%) with a consequent densification of the material.

Some studies have been conducted to experimentally investigate the influence of density of cork on its compressive behaviour. Anjos et al. [2] tested cork specimens of different densities, ranging from 120 to 200 kg/m^3, under compression. Experimental results show that high density cork exhibits a higher stiffness and strength. These results have been confirmed in a follow-up study by Anjos et al. [3], where cork specimens belonging to three classes of density, indicated as "low density" (110 to 150 kg/m^3), "mid density" (150 to 190 kg/m^3) and "high density" (190 to 250 kg/m^3), are tested.

With the aim to extend its field of applications and to exploit cork waste (residual parts coming from the manufacturing process of stoppers, discs and small pieces, discarded raw cork planks, etc.), cork agglomerates are

✉ Anita Catapano
anita.catapano@bordeaux-inp.fr

Marco Montemurro
marco.montemurro@ensam.eu

1 Arts et Métiers Institute of Technology, Université de Bordeaux, CNRS, INRA, Bordeaux INP, HESAM Université, I2M UMR 5295, F-33405 Talence, France

2 Bordeaux INP, Université de Bordeaux, Arts et Métiers Institute of Technology, CNRS, I2M UMR 5295, F-33405 Talence, France

produced by embedding cork granules in a polymeric resin. The first phase of cork agglomerates manufacturing process consists in shredding cork into small grains of a given size and, then, mixing them with a binder (usually a thermosetting resin). Finally, the curing phase can be realised through different techniques, e.g. resin transfer moulding, vacuum bagging, compression moulding and spray lay-up. Compression moulding constitutes one of the most widely used techniques due to its high rate of production and reproducibility [22].

Compression moulding process is characterised by a mould cavity, usually made of steel, wherein the mixture of cork granules and resin is uniformly distributed. After, this mixture is compressed into the mould by a hydraulic press. Once a preset density is reached, the mould is locked and cured. Thanks to this manufacturing process, it is possible to produce agglomerate blocks of different sizes. Afterwards, through machining processes, the block of cork agglomerate can assume any shape depending on the application at hand.

The mechanical properties of cork-based composites depend on the main design parameters as the cork quality and density, the fraction and the size of cork particles in the mixture, the amount and the type of resin, the overall packing density and the moulding process parameters. More precisely, the main design parameters related to the compression phase of the compression moulding process are: the applied pressure, the initial arrangement of cork granules inside the mould, the size of the mould, the stiffness of the mould, the roughness of the mould walls.

Santos et al. [31] studied the influence of the amount and the type of binder, the grain size and the agglomerate density on the mechanical behaviour of compression moulded agglomerates. Experimental results show that the higher the pre-stress state of the cork/resin mixture the higher the stiffness and strength of the final agglomerate.

Several studies have been conducted to investigate the compaction dynamics of a wide variety of granular materials like sediments (i.e. soil compaction) [11], elemental metals and alloys [32, 33], energetic materials [5, 26] and ceramic alloys [7, 9]. Numerical models have shown to be more accurate than analytical models and cheaper than experimental tests to study the behaviour of granular materials subject to high compressive strains [29]. Zhang et al. [35] studied the influence of the initial packing arrangement of copper particles on their compaction behaviour by means of discrete element method (DEM) coupled with a finite element (FE) model. Moszumanski and Trzepiecinski [28] investigated the influence of shape and dimension of cork particles on the compaction process to fabricate brake pads by means of FE dynamic simulations. Huang et al. [20] studied the compaction of binary composite Al/SiC powders with different size ratios, initial packing arrangements and compositions. In all these works, numerical results show that initial packing arrangement of the particles considerably affects the stress distribution within the agglomerate. However, the initial arrangement of the granules is not determined by means of simulation, but modelled through digital image correlation (DIC) or according to a regular arrangement.

To the best of the authors knowledge, no physically-based model simulating the compression moulding process of cork-based agglomerates is available in the literature. The aim of the present work is to propose an efficient modelling strategy (with the related algorithms) able to predict the pre-curing stress state of the cork agglomerate due to the compression applied during the manufacturing process. The dissipative mechanisms related to the viscous behaviour of cork are negligible during this phase, which takes only few minutes (the stress relaxation phenomenon of cork occurs during the curing and cooling phases and takes several hours). Conversely, the pressure value to be applied to the mixture before curing is of primary importance because it has an important influence on the final properties of the agglomerate. To achieve this ambitious goal, a computational procedure able to simulate the compression moulding process since its early stages (the grains drop inside the mould) up to the compression of the agglomerate has been developed. To this end, a generalised Voronoi's Tesselation (VT) algorithm developed in [13, 14] coupled with a 2D physics engine [6, 8, 19] is developed in order to simulate the filling process of the mould cavity. The resulting arrangement of cork particles is, then, used to build a 2D FE model of the agglomerate in order to perform the simulation of the compression process. The average stress-strain state of the agglomerate during the compression phase is assessed and a sensitivity analysis of the macroscopic equivalent mechanical properties of the cork composite to two main parameters (i.e. the natural cork density and particles packing density) is performed.

The paper is organised as follows: a brief description of the compression moulding process is presented in "The compression moulding process". The algorithm simulating the mould filling phase is described in "Simulation of the mould filling phase", while the numerical strategy simulating the compression moulding phase is presented in "Simulation of the compression phase". The numerical tests and results are presented in "Numerical tests and results". Finally, some conclusions and prospects are drawn in "Conclusions".

The compression moulding process

Generally, cork moulded agglomerates are produced by means of a two-part mould (usually a metallic one) defined by a cavity and a top plate, whose thickness varies from

1 mm to over 25 mm. The main steps of the compression moulding process are represented in Fig. 1. Firstly, the mixture of cork particles, the resin and/or other additives is poured into the mould cavity. Although this step seems simple, uneven distribution of the mixture can cause an agglomerate characterised by an inhomogeneous density. Therefore, it is fundamental to use a proper mixing device (shovel or helicoidal mixers) to ensure a homogeneous distribution of particles and binder as well as a uniform distribution of the mixture into the mould cavity to ensure a homogeneous density of the resulting product.

Secondly, the compression phase takes place. During this phase, the role of the cover is twofold: it evenly distributes the pressure applied by the hydraulic press onto the mixture and it sets the final volume. Depending on the required agglomerate density, the pressure applied by the hydraulic press may go up to 2 MPa [1]. In this phase, the pressure load must be gradually increased to allow for a proper redistribution of the load within the agglomerate and, thus, to avoid an inhomogeneous density distribution along the thickness of the final agglomerate (i.e. a higher density at the top and bottom faces and a lower one in the middle region).

Once the desired volume is reached, the cover is locked until the curing stage is completed. The curing stage, i.e. the resin polymerisation phase, takes place in a oven at a temperature between 100°C and 150°C for a period varying from one to twenty hours [30] depending on several factors, i.e. the resin and/or other additive properties, the mould size, the agglomerate density, the presence of water into the mixture, etc.

Finally, after a cooling phase the agglomerate block can be demoulded and cut. The compression moulding process allows to produce agglomerates with a preset density at a very high production rate thanks to the use of tunnel ovens able to cure several moulds at the same time. As an example, the preset density of wall coverings agglomerates is equal to 200-300 kg/m^3. On the other hand, for high-performance applications the agglomerate density can reach 450-600 kg/m^3.

It is noteworthy that this work focuses exclusively on the development of a dedicated modelling strategy to simulate both the filling and the compression phases illustrated in Fig. 1a-b. In particular, the mixing phase is not modelled and it is assumed that particles and matrix are "ideally" mixed, i.e. the mixture is realised in such a way that: 1) each cork particle is adequately surrounded by a resin film and the composite material is as uniform as possible once the curing phase is finished; 2) cork particles of different size are randomly distributed in order to obtain an agglomerate of uniform density. Of course, the influence of the most relevant process parameters involved in these phases will be taken into account in the proposed strategy (and into the related algorithms). In particular, the parameters considered in this study are: the cork particles density and size (i.e. binary particles size mixing will be considered) and the applied compression strain.

Simulation of the mould filling phase

With the aim of predicting the geometric arrangement of cork granules dropping inside the mould, an *ad-hoc* algorithm, paired with a 2D physics engine [8], is presented in this Section. The arrangement of cork particles is determined assuming that, in this phase of the manufacturing process, the presence of the liquid-state resin is negligible. The resin weight fraction in cork-based agglomerates is around 10% (corresponding to a volume fraction of about 2%) which constitutes a thin liquid film around the granules during the mould filling phase [1]. Furthermore, when cork particles are mixed with the resin, a small quantity of water is added to the mixture to reduce the viscosity of the resin in order to obtain a better distribution of the binder around the particles. On the other hand, the minimisation of the friction coefficient between cork particles, due to the liquid resin film, is taken into account.

From a numerical perspective, the flowchart summarising the algorithm developed to simulate the mould filling

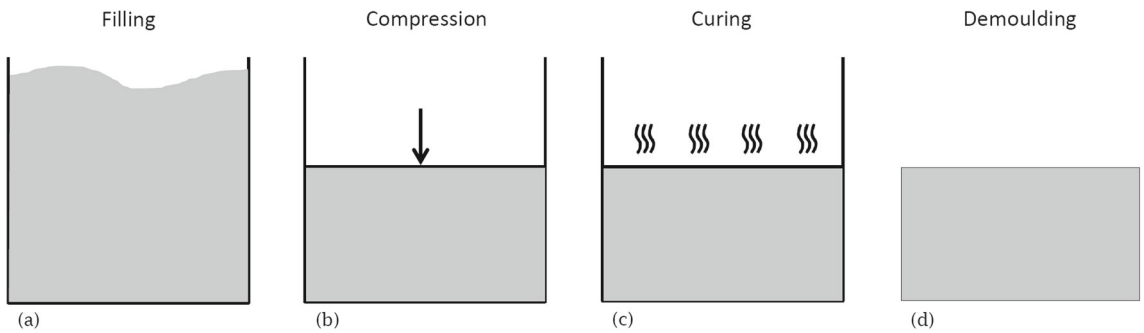


Fig. 1 Basic steps of the compression moulding process: the mould cavity is filled by the mixture of cork and resin (**a**), the material is compressed by a hydraulic press (**b**), the mould is locked and cured in a oven (**c**), once cooled, the agglomerate can be demoulded (**d**)

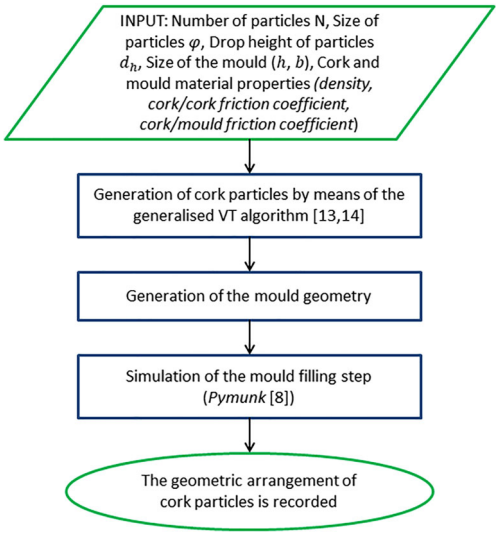


Fig. 2 Flowchart of the mould filling algorithm

phase (coded in Python environment) is illustrated in Fig. 2. Firstly, cork particles of different size and shape are generated using the generalised VT algorithm presented in [13, 14]. Secondly, the geometry of the mould is generated and the cork particles are successively dropped inside the mould from random positions at constant height. The mould filling step is realised using the 2D physics engine *Pymunk* (programmed in Phyton environement) and available at [8]. The Pymunk is a 2D physics library able to simulate 2D rigid body physics like collision, contact, friction and stacking. The particles drop simulation is stopped when the mould is filled and all grains have reached the equilibrium. The equilibrium of particles is reached when the resultant of the forces acting on each particle is equal to zero. For a deeper insight in the theoretical background of *Pymunk* algorithm, the reader is addressed to [6, 19]. Finally, the position of each polygon in terms of edges coordinates is recorded. The final arrangement of the grains depends on several input

Table 1 Input values of mould filling algorithm for a typical cork agglomerate

Input	Value
Mould filling parameters	
Drop height of particles, d_h	15 mm
Size of the mould, h=b	12 mm
Steel density	7850 kg/m^3
Friction coefficient cork/steel	1.2 [15]
Cork particles parameters	
Cork density	130 kg/m^3
$V_{p\phi}$ (ϕ =0.5 mm)	50%
$V_{p\phi}$ (ϕ =1 mm)	50%
Friction coefficient cork/cork	0

parameters as the drop height d_h (the starting speed of particles is equal to zero), the size of the mould (i.e. its height h and width b), the mechanical properties of the cork, the cork density, the mould material, the particles size (i.e. the equivalent diameter ϕ of a circle having the same area of the particle) and their number N. Fig. 3 illustrates the phases of the simulation of the mould filling process for a typical cork agglomerate whose input values are listed in Table 1. In Table 1, $V_{p\phi}$ corresponds to the volume fraction of particles of a given equivalent diameter ϕ (occupying a volume denoted as $\mathcal{V}_\phi$) with respect to the actual volume occupied by all particles indicated as $\mathcal{V}_{\text{tot}}$. $V_{p\phi}$ is defined as:

$$V_{p\phi} = \frac{\mathcal{V}_\phi}{\mathcal{V}_{\text{tot}}}. \tag{1}$$

Simulation of the compression phase

Once the mould filling phase is completed, the mixture of cork and resin is compressed by the hydraulic press until a predefined density of the agglomerate is reached. This

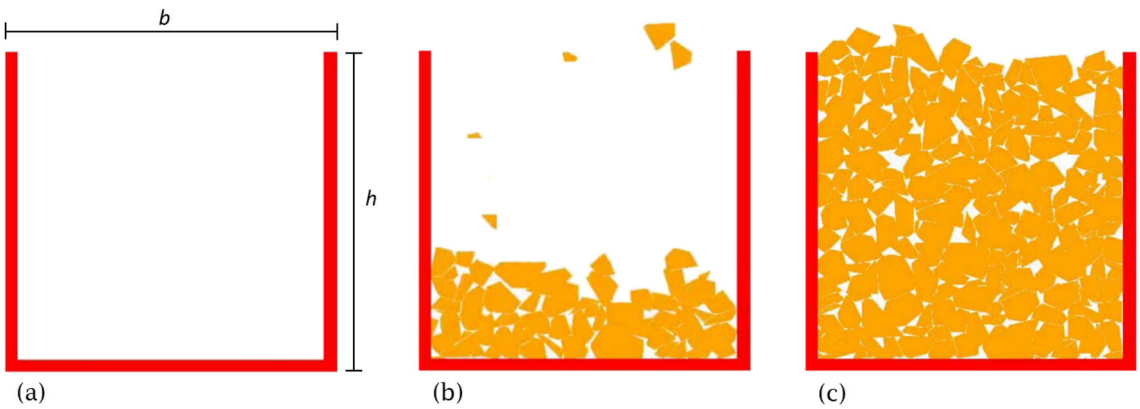


Fig. 3 Simulation of the mould filling phase for a typical cork agglomerate: the mould geometry is generated (**a**), cork particles drop into the mould cavity (**b**) until all particles have reached the equilibrium (**c**)

phase of the manufacturing process considerably influences the final behaviour of the cork agglomerate because the pressure applied to the mixture will induce the final density of the agglomerate together with a pre-stress state within the agglomerate. The working hypotheses and the modelling strategy for the compression phase are described here below.

Hypotheses on agglomerate components

During the compression phase, the pressure applied onto the mixture tends to redistribute the liquid-state resin around the cork particles and inside the interstices. Furthermore, cork particles deform according to the mechanical behaviour of natural cork and they will interact with each others as a granular material.

In this context, the pre-stress state of the compression moulded cork agglomerate is determined under two main hypotheses: (a) the effect of the resin is negligible; (b) each particle behaves like an equivalent isotropic hyperelastic material. Concerning the first hypothesis, in this phase of the manufacturing process the thin resin film around the cork particles is still in a liquid-state. From a mechanical point of view, the mixture inside the mould can be approximated as a granular material composed only of cork particles. Regarding the second hypothesis, it is noteworthy that natural cork shows an anisotropic mechanical behaviour and it can be considered roughly as a transversely isotropic material, for small strains, as discussed in [18]. In the case of large deformations, cork exhibits a generic anisotropic non-linear behaviour whose radial, tangential and axial stress-strain curves are depicted in Fig. 4. Taking into account the natural behaviour of cork it is clear that second hypothesis is rather strong. This assumption, however, is due to the lack of complete data about the anisotropic non-linear behaviour of natural cork. Finally, in order to reduce the impact of the second hypothesis on numerical results, an *equivalent* non-linear isotropic law has been determined. More precisely, a weighted average stress-strain curve is calculated from the radial, axial and tangential stress-strain curves of natural cork available in literature [3]. The equivalent isotropic stress-strain curve obtained from stress-strain curves illustrated in Fig. 4, for three different

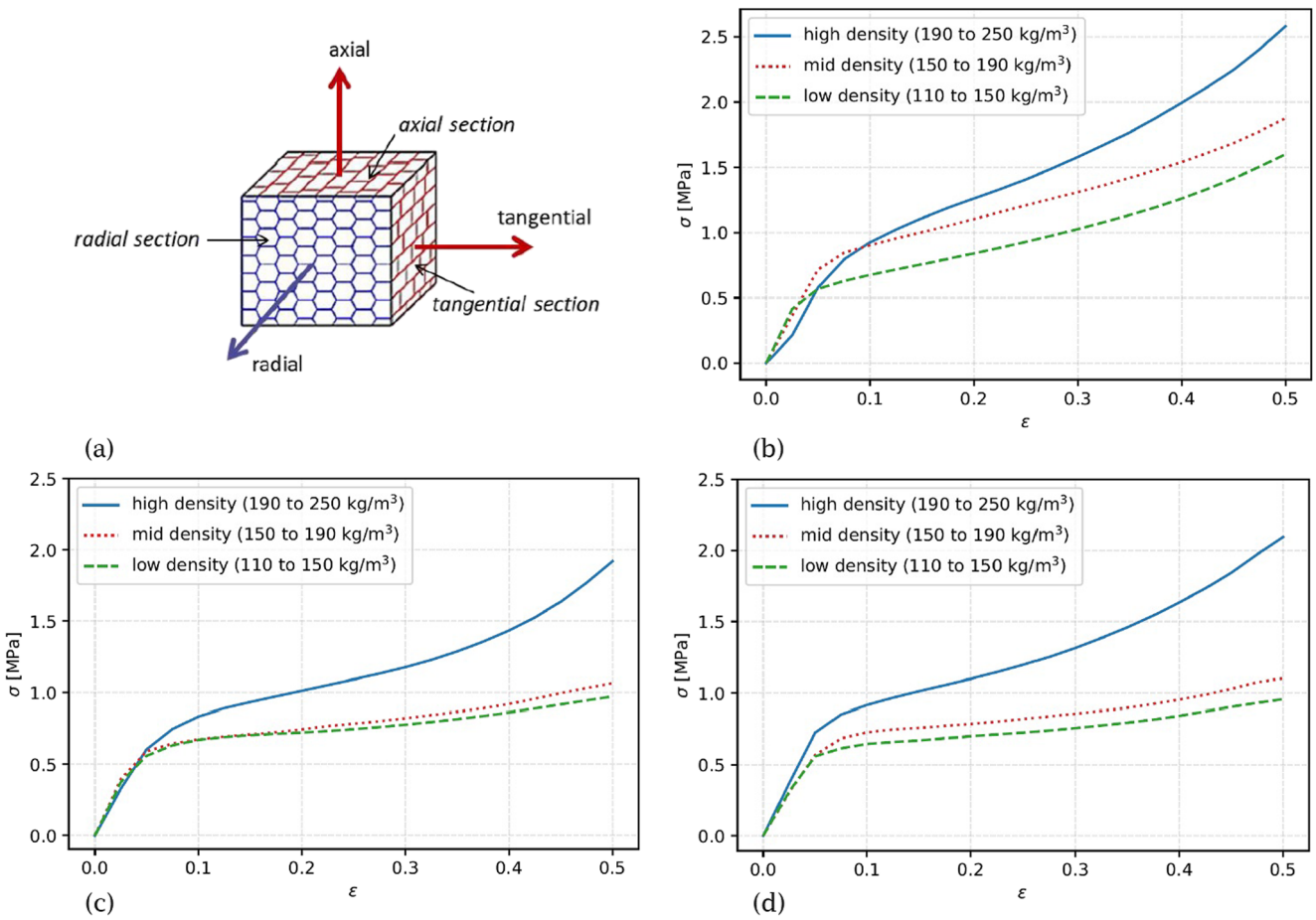


Fig. 4 Schematic representation of the honeycomb microstructure of cork (**a**) and stress–strain curves obtained from compression tests, up to 50% of strains, along radial (**b**), axial (**c**) and tangential (**d**) directions on cork specimens belonging to three different classes of density [3]

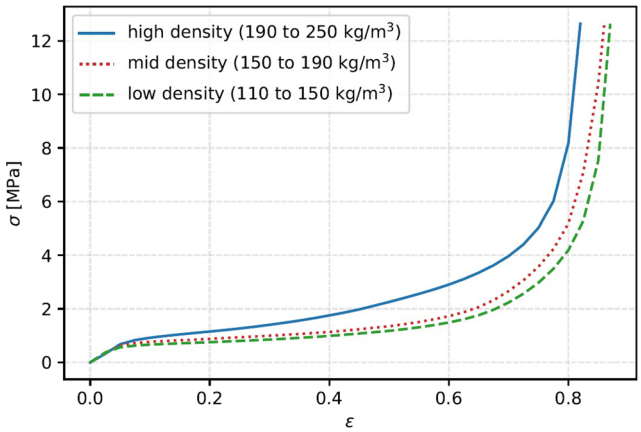


Fig. 5 Equivalent isotropic stress-strain curves of cork for three different classes of density

natural cork densities (taken from [3]), is shown in Fig. 5. The equivalent stress-strain curves of Fig. 5 (beyond the 50% of deformations) are obtained using data of natural cork reported in [2] by means of a two-step procedure: first, stress-strain data from [2] are interpolated to build the resulting stress-strain curves in radial and tangential directions for each class of density (the stress-strain curve in axial direction is assumed equal to the tangential one). Then, the weighted average stress-strain curve (i.e. the weight assigned to the stress-strain curve along tangential direction is equal to two) is calculated from the interpolated curves.

The simulation procedure and the related finite element model

The flowchart of the FE-based compression phase is shown in Fig. 6. The starting geometric arrangement of cork particles inside the mould is defined by means of the algorithm (programmed in Python) presented in "Simulation of the mould filling phase". After, data from Python are imported in ANSYS Workbench environment in order to build the FE model of both the agglomerate and the mould.

Then, the compression phase is simulated by means of an explicit dynamics analysis. With the aim to achieve results with a good level of accuracy and reduced computational costs, a minimum mould size containing at least 100 particles is considered to build the FE model. For the required explicit dynamic analysis, 8-nodes plane quadratic elements PLANE183 with two degrees of freedom per node, under plane strain hypothesis, have been used. The FE models of the agglomerate and of the mould are illustrated in Fig. 7. The contact between the mould and the particles and that between particles is taken into account by means of CONTA175 and TARGET169 elements by using the default options described in [4].

The mould is made of steel with the following properties: Young's modulus equal to 210 GPa, Poisson's coefficient equal to 0.3 and density equal to 7850 kg/m^3. The friction coefficient between cork particles and mould surface is set equal to 1.2 as detailed in Table 1. As far as cork particle behaviour is concerned, the hyperelastic stress-strain curve of Fig. 5 (corresponding to only one prescribed density) is considered. Hyperelastic material models are described through different strain energy density functions available in ANSYS Workbench. In this study, the Mooney-Rivlin material model [27] is used. Two, three, five and nine term Mooney-Rivlin's forms, are generally adapted to simulate hyperelastic materials undergoing large deformations as cork. Depending on the number of inflection points in the stress-strain curve to model, the form of the Mooney-Rivlin material model is chosen. In the case of the stress-strain curves of cork in Fig. 5 there is only one inflection point. Therefore, the five terms Mooney-Rivlin model, available in Ansys Workbench [4], suffices to model the cork particle behaviour illustrated in Fig. 5. The strain energy density function describing the five terms Mooney-Rivlin model is:

$$W = C_{10}(\bar{I}_1 - 3) + C_{01}(\bar{I}_2 - 3) + C_{20}(\bar{I}_1 - 3)^2 + C_{11}(\bar{I}_1 - 3)(\bar{I}_2 - 3) + C_{02}(\bar{I}_1 - 3)^2 + \frac{K}{2}(J-1)^2, \quad (2)$$

where C_{10}, C_{01}, C_{20}, C_{11} and C_{02} are material constants determined through experimental tests. The initial bulk modulus K and shear modulus μ are defined as:

$$K = \frac{2}{d}, \ \mu = 2(C_{10} + C_{01}), \quad (3)$$

where d is the material compressibility parameter equal to:

$$d = (1 - 2\nu_c)/(C_{10} + C_{01}). \quad (4)$$

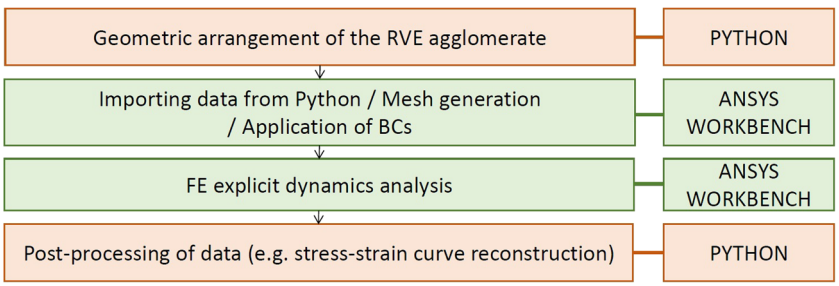


Fig. 6 Flow-chart of the numerical simulation procedure of the compression phase

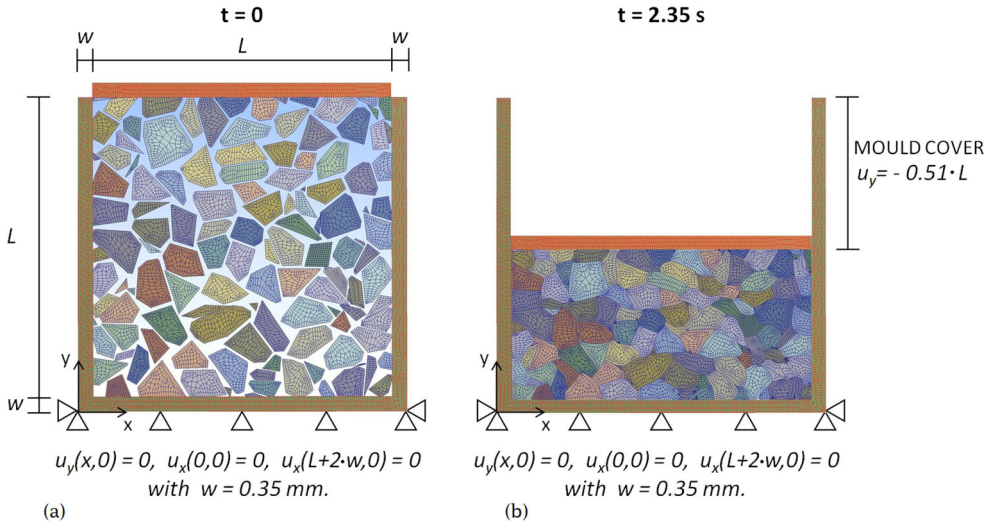


Fig. 7 Boundary conditions of the FE models of the agglomerate and of the mould at t=0 (**a**) and at t=2.35 s (**b**)

In Eq. 2, $J = \det(\mathbf{F})$ (with $\mathbf{F}$ indicating the deformation gradient tensor), while $\bar{I}_1$ and $\bar{I}_2$ are the invariants of tensor $\overline{\mathbf{B}}$ defined as:

$$\bar{I}_1 = J^{-2/3} I_1,\ \bar{I}_2 = J^{-4/3} I_2. \tag{5}$$

Tensor $\overline{\mathbf{B}}$ is defined as:

$$\overline{\mathbf{B}} = (\det\mathbf{B})^{-1/3}\,\mathbf{B}, \tag{6}$$

where $\mathbf{B}$ is the left Cauchy-Green strain tensor, i.e.

$$\mathbf{B} = \mathbf{F}\mathbf{F}^T. \tag{7}$$

Finally, I_1 and I_2 are the first and second invariants of tensor $\mathbf{B}$:

$$\begin{aligned} I_1 &= \lambda_1{}^2 + \lambda_2{}^2 + \lambda_3{}^2, \\ I_1 &= \lambda_1{}^2\lambda_2{}^2 + \lambda_2{}^2\lambda_3{}^2 + \lambda_3{}^2\lambda_1{}^2, \end{aligned} \tag{8}$$

where λ_j $(j = 1, 2, 3)$ are the eigenvalues of $\mathbf{B}$.

Material constants, for each cork density presented in Fig. 5, are listed in Table 2. The Mooney-Rivlin material constants have been estimated by means of the "Hyperelastic Material Curve Fitting" tool available in ANSYS Workbench while J is set equal to one and ν_c equal to zero.

To determine the stress-strain curve of the agglomerate, during the compression moulding phase, a time-dependent displacement is imposed on the mould cover in order to obtain a proper redistribution of the load through the thickness of the granular material, as illustrated in Fig. 7. A 2D explicit dynamics analysis using ANSYS Autodyn solver, under plane strain hypothesis, is run for each case of cork density.

Numerical tests and results

Test cases

The stress-strain state and the density of the cork agglomerate during the compression phase is here evaluated. With the purpose to evaluate the influence of particle size on the pre-stress state of the agglomerate, two different configurations of a cubic mould of side L=7.2 mm have been analysed. The first configuration, identified as a *low packing density* configuration, is constituted of binary mixes of particles diameters equal to 0.5 mm and 1 mm with a relative volume fraction $V_{p\phi}$ equal to 50% for each size (this configuration is generally employed for the fabrication of cork-based agglomerates, see [21, 22, 25, 31]). The second configuration, identified as a *high packing density* configuration, is constituted of binary mixes of particles diameters equal to 0.25 mm and 2.5 mm with a relative volume fraction $V_{p\phi}$ equal to 30% for particles with $\phi = 0.25$ mm and to 70% for particles with $\phi = 2.5$ mm.

It is a well-known fact that, as long as the particle size distribution is increased, the particles packing density increases accordingly when filling a given volume [24]. The packing density of binary mixes of particles sizes

Table 2 Material constants for each class of cork density estimated by the curve fitting tool

Cork density [kg/m^3]	C_{10} [MPa]	C_{01} [MPa]	C_{20} [MPa]	C_{11} [MPa]	C_{02} [MPa]
110 ÷ 150	3.5182	−2.5662	0.7403	−0.0275	0.0025
150 ÷ 190	3.8185	−2.8002	0.8249	−0,0376	0,0036
190 ÷ 250	6.2648	−4.6341	1.5153	−0.1411	0.0171

can be evaluated through three main models available in the literature: a two-parameter model [34], a three-parameter model [23], and a compressible model [12]. These models, developed for spherical particles, have been adapted to polygonal particles in [24]. The inputs of these models are: the monodisperse packing density of coarse and fine particles and the size ratio between fine and coarse particles. In [16], the author compared the two- and three-parameter models to experimental results with binary mixes of polygonal ceramic beads. Results show that the models give a good estimation of the packing densities and that the packing density for mixed particle sizes is higher than that resulting from a mixture composed of monodisperse particles, i.e. a mixture made of particles with the same ϕ. In particular, in [16] it is shown that the maximal packing density, in the case of a binary mixing of polygonal particles characterised by a size ratio equal to ten, is reached for a relative volume fraction $V_{p\phi}$ of small particles equal to 30%. This result is better described by the three-parameter model, whereas the two-parameter model overestimates the packing densities.

In the present work the minimum size of particles in high packing configuration is chosen equal to 0.25 mm which corresponds to the minimum cork particle size available in the marketplace. At the end of the mould filling phase, in low packing density configuration, the particles occupy the 72% of the mould volume, while in high packing density configuration, they occupy the 75% of the mould volume.

The simulation of the cork agglomerate compression process in a rigid container was carried out for three average density values of natural cork calculated from the data in Fig. 5 and Table 2: low density cork particles (130 kg/m^3), medium density cork particles (170 kg/m^3), high density cork particles (220 kg/m^3). For each one of these densities the two packing density configurations (i.e. low and high packing density) were analysed. All numerical simulations have been carried out assuming no friction between cork particles in order to take into account for the effect of the resin film which reduces the friction coefficient.

Numerical results

During the simulation, two different stages have been identified for both agglomerate configurations: 1) a compaction stage (purely numerical) wherein mutual contact between particles occurs, as illustrated in Fig. 8a–c and 9a–c; 2) a compression stage wherein the granular material is increasingly deformed reaching a desired density, as shown in Figs. 8d-e and 9d-e. It is noteworthy that for each density and cork size, a unique analysis has been carried out because each simulation is quite expensive in terms of computational costs: it takes about 24 hours on a work station

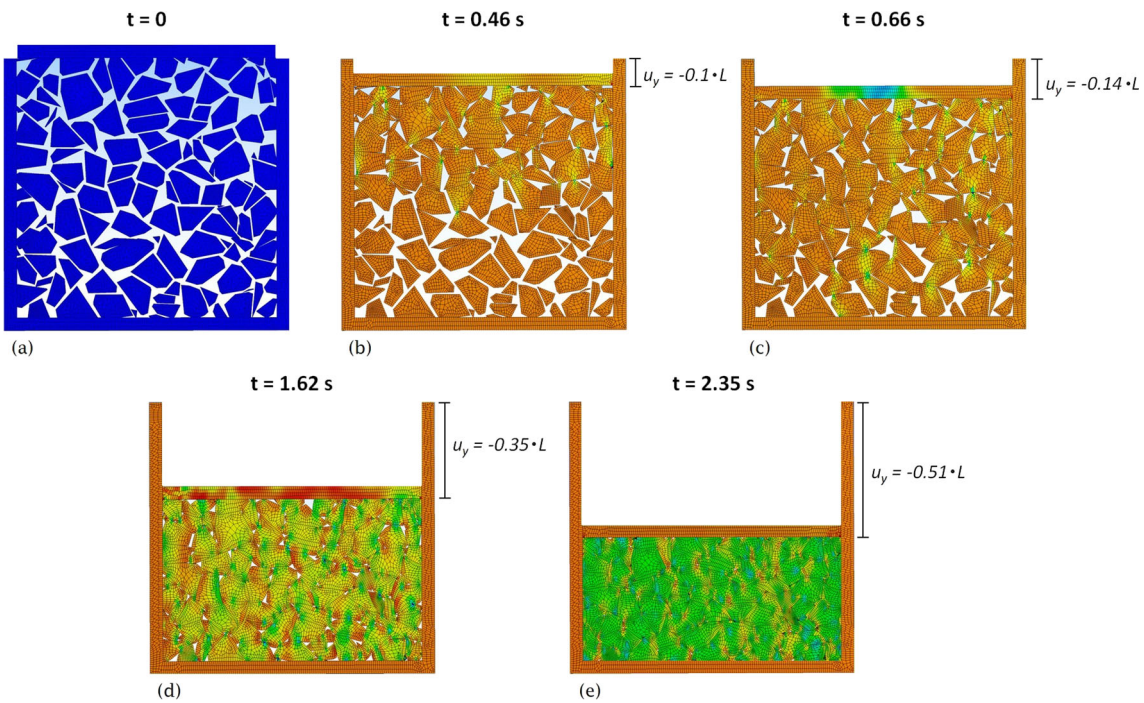


Fig. 8 Compression moulding stages for the first configuration of cork agglomerate: all cork particles are isolated at t=0 (**a**), mutual contact between particles located on the top of the mould starts at t=0.46 s (**b**) the granular material is compacted at t=0.66 s (c), the granular material is progressively compressed (**d**) until the imposed displacement u_y=0.51 L is reached (**e**)

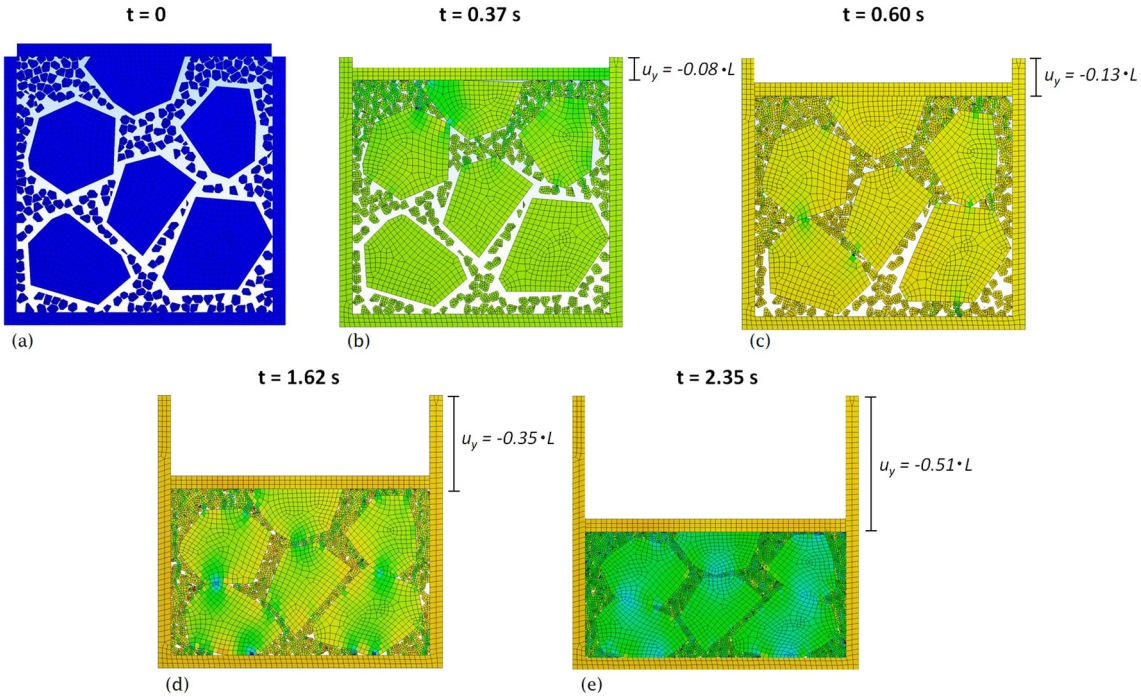


Fig. 9 Compression moulding stages for the second configuration of cork agglomerate: all cork particles are isolated at t=0 (**a**), mutual contact between particles located on the top of the mould starts at t=0.37 s (**b**) the granular material is compacted at t=0.60 s (**c**), the granular material is progressively compressed (**d**) until the imposed displacement u_y=0.51 L is reached (**e**)

with an Intel Xeon E5-2697v2 processor (2.70-3.50 GHz) and four cores dedicated to the finite element analysis. The compaction phase is considered completed when the following criterion is satisfied: the average normal stress $\bar{\sigma}_y$ in the agglomerate reaches 10^{-2} MPa. This value has been determined through several compaction tests and it corresponds to the average stress registered when the ratio of the contact surface between particles to the sum of particle surfaces belongs to the range [0.3; 0.4]. From Figs. 8c and 9c, it can be observed that, at the end of the compaction phase, the high packing density configuration satisfies the compaction stop criterion at $t = 0.60$ s, namely six seconds before the low packing density configuration. This first result shows the efficiency of the high packing density configuration, which needs a lower applied strain (0.13 instead of 0.14) to reach a given average stress. Indeed, at $t = 0.60$ s, i.e. when the applied strain is equal to 0.13, the particles in low packing density configuration occupy the 85% of the mould volume while the particles in high packing density configuration occupy the 88% of the mould volume.

The compaction phase, being a purely numerical phase, it has not been considered in the following results concerning the evaluation of the stress-strain and density-strain curves of the agglomerate during the compression phase. As far as the compression phase is concerned, it must be pointed out that some computational issues arise: due to large deformations some elements become distorted and node to face contact interactions are compromised. To this end, the parameters tuning the behaviour of the contact region [4], have been properly set according to the guidelines provided in [4] and a further check to avoid the compenetration between elements in the neighbourhood of the contact region has been considered. In particular, when node-to-surface compenetration occurs, the analysis is stopped and a mesh refinement is performed for those elements belonging to the zones which do not satisfy the non-penetration check.

To determine the resulting stress-strain curve of the agglomerate, the average stress and strain fields $\bar{\sigma}_y$ and $\bar{\varepsilon}_y$ inside the agglomerate during the compression stage have been computed, for each time-step, as follows [10, 13, 14, 17]:

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}_y(t) &= \frac{1}{A_M}\int_{A_M}\sigma_y(x,y,t)\,dA, \\ \bar{\varepsilon}_y(t) &= \frac{\Delta u_y(t)-\Delta u_y(t_c)}{L_c}, \end{aligned} \tag{9}$$

where A_M is the overall internal area of the mould (the top side being delimited by the cover), $\Delta u_y(t)$ is the time dependent imposed displacement, $\Delta u_y(t_c)$ is the imposed displacement at the beginning of the compression phase and L_c is the height of the internal area of the mould at the beginning of the compression phase. It is noteworthy that, since the compaction phase is excluded from stress-strain curves of the agglomerate, the applied strain is considered restarting from zero at the beginning of the compression phase.

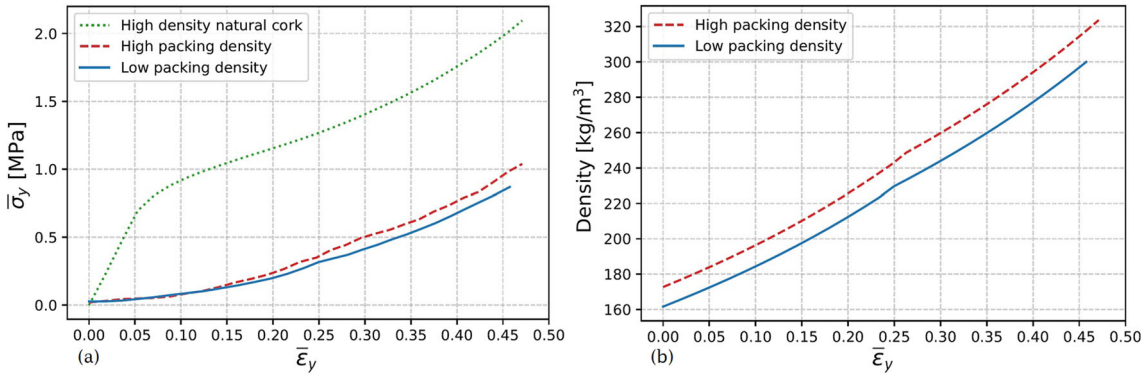


Fig. 10 Stress-strain curves of the granular material vs stress-strain curve of natural cork (a) and density-strain curves of granular materials (b) for the low density natural cork

The stress-strain and the density-strain curves for the low, medium and high density natural cork agglomerate are illustrated in Figs. 10, 11 and 12, respectively. In agreement with the above remarks, it can be observed that the stress-strain curve related to the two packing configurations ends at different values of the applied strain: this is due to the computational issues related to particle-to-particle contact control at high deformations. To compare results of Figs. 10, 11 and 12, the end of the compression phase is set at $\bar{\varepsilon}_y = 0.45$.

When comparing results of both configurations of the agglomerate (i.e. low and high packing density) for the three different types of natural cork, it is possible to observe that the high packing configuration (i.e. the red curve) reaches a higher internal stress and density for the same average strain. This is due to the different absolute volume fraction of cork achieved with the two different packing configurations.

In Table 3, the value of the stress $\bar{\sigma}_y(t)$ and of the density of the agglomerates at the end of the compression phase (i.e. at $\varepsilon_y = 0.45$) is reported. These values are compared to the same properties of natural cork at the same applied strain. Results of Table 3 show that the stress and density of the agglomerate, of course, is always lower than that of natural cork. Moreover, the high packing density configuration show a normal stress $\bar{\sigma}_y(t)$ always higher (of about 12%) than that of the low packing density configuration. Accordingly, the density of the high packing density configuration is higher (of about 5%) than that of the low packing density configuration.

In the light of the above remarks, it is interesting to compare curves of Figs. 10, 11 and 12, also in terms of tangent moduli. The value of the tangent modulus of the agglomerates at the end of the compression phases (i.e. at $\varepsilon_y = 0.45$) is reported in Table 4. These moduli are compared to the tangent modulus of natural cork at the same applied strain. Results of Table 4 show that the tangent modulus of the agglomerate in the high packing density configuration is always higher than that of the agglomerate in low packing density configuration (10%, 8% and 25% higher when comparing each one of the three studied cases, respectively). Moreover, the tangent modulus obtained with a high packing density configuration, at the end of the compression phase, is also higher to that of low density and medium density natural cork (22% and 14% higher, respectively). This last result is very important since it

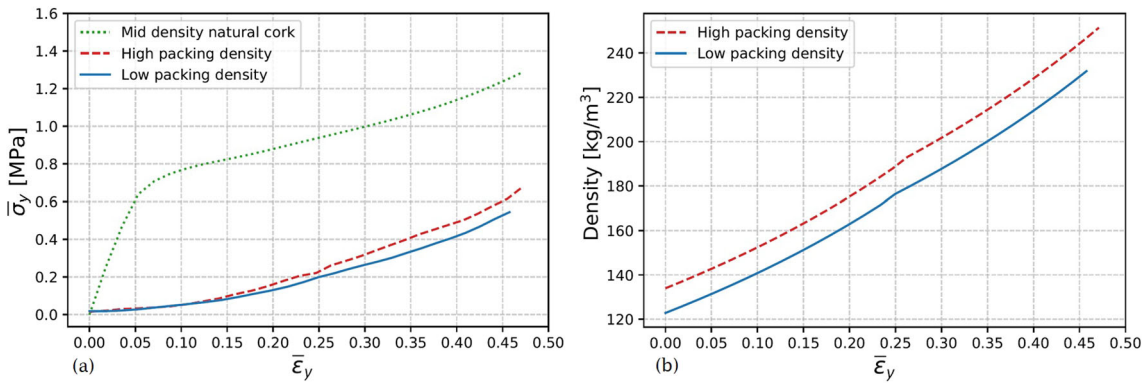


Fig. 11 Stress-strain curves of the granular material vs stress-strain curve of natural cork (a) and density-strain curves of granular materials (b) for the mid density natural cork

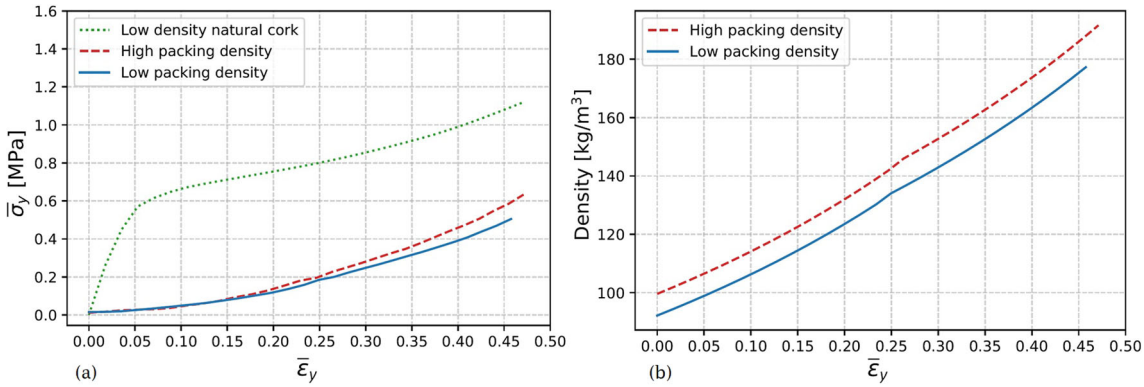


Fig. 12 Stress-strain curves of the granular material vs stress-strain curve of natural cork (a) and density-strain curves of granular materials (b) for the high density natural cork

shows that a proper packing density configuration of the agglomerate can allow achieving a higher stiffness of the resulting composite (compared to that of natural cork) with a considerably lower density material (the density of the agglomerate being 21% lower than that of natural cork for both cases). This is due, probably, to the interaction between particles in the specific high packing density arrangement which acts on the strain-dependent stress distribution. This positive effect of the agglomerate in high packing density configuration is, however, exceeded by high density natural cork (i.e. the tangent modulus of natural cork is higher of about 7% that that of the corresponding agglomerate in high packing configuration). These results show the importance of selecting a proper particle size mixing to maximise packing density in order to improve cork agglomerate stiffness properties.

General remarks

Numerical results show that the granular material behaves, under compression, differently than the natural cork. This is mainly due to the different mechanical behaviour of "granular materials" wherein phenomena linked to particles interaction and arrangement during compression intervene in addition to those of the corresponding "continuum medium". With the aim of evaluating the arrangement of a granular material in terms of interaction between cork particles during the compression process, a contact surface and porosity evolution analysis has been carried out. For the sake of brevity, in the present work only the numerical results of the compression stage for the low density cork in low packing density configuration are presented.

To this purpose, the deformed geometries of the agglomerate at six different time-steps of the compression stage have been recovered and are illustrated in Fig. 13. A computer aided design (CAD) model for each geometry has been built in Autocad and contact surfaces between cork particles as well as porosity volume fraction have been evaluated, as illustrated in Fig. 14.

In particular, Fig. 14 shows that the greater the applied strain the greater the ratio of the contact surface to the sum of particles surfaces, see Fig. 14a, and the lower the porosity volume fraction, see Fig. 14b.

As a matter of fact, during the initial phase of the compression stage, cork particles move and occupy empty spaces (interstices) within the granular material. For this reason, the stress distribution within the agglomerate in Figs. 10a, 11a and 12a, is discontinuous and considerably

Table 3 Stress $\bar{\sigma}_y$ and density of natural cork and cork agglomerates at the end of the compression phase ($\varepsilon_y = 0.45$)

	Natural cork	Low packing density	High packing density
	Low density natural cork		
$\bar{\sigma}_y$ [MPa]	1.08	0.49	0.57
Density [Kg/m^3]	236.36	175.34	187.39
	Medium density natural cork		
$\bar{\sigma}_y$ [MPa]	1.25	0.54	0.62
Density [Kg/m^3]	309.09	229.34	244.25
	High density natural cork		
$\bar{\sigma}_y$ [MPa]	2.02	0.87	0.99
Density [Kg/m^3]	400.00	296.87	314.44

Table 4 Tangent modulus (values in [MPa]) of natural cork and cork agglomerates at the end of the compression phase ($\varepsilon_y = 0.45$)

Natural cork	Low packing density	High packing density
Low density natural cork		
1.88	2.17	2.41
Medium density natural cork		
2.15	2.30	2.50
High density natural cork		
5.01	3.46	4.63

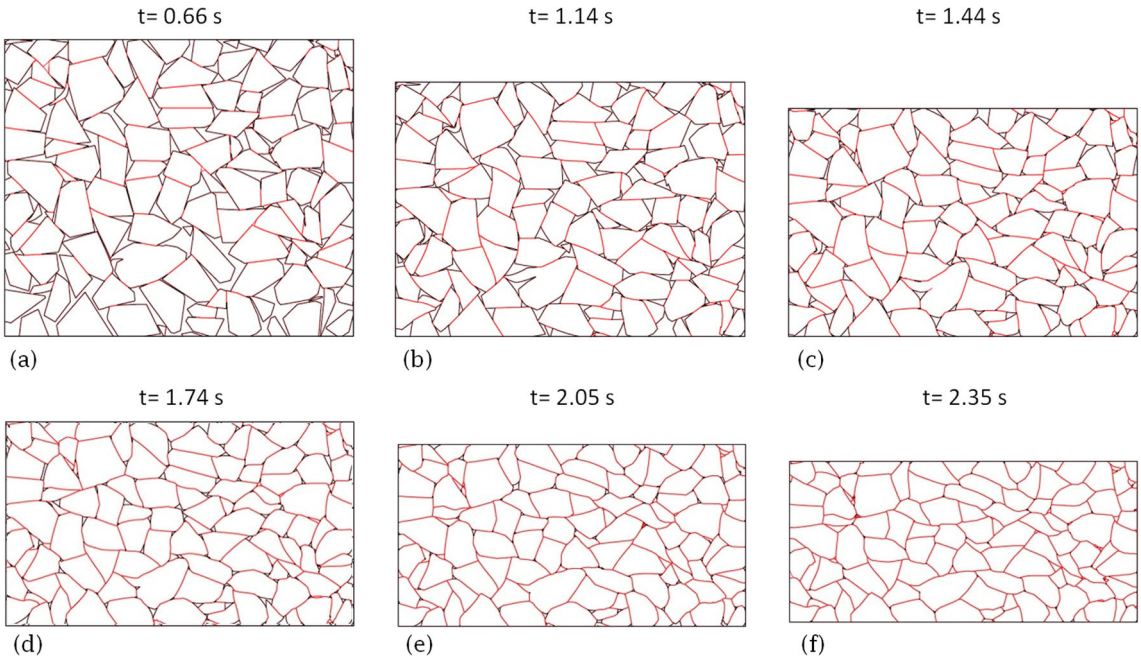


Fig. 13 Contact surfaces, highlighted with red lines, between cork particles from t=0.66 s (**a**) to t=2.35 s (**f**)

lower than that of natural cork submitted to the same strain. Finally, the granular material tends to assume a mechanical behaviour which is qualitatively closer to that of natural cork only when the porosity becomes almost equal to zero.

Conclusions

A pertinent modelling strategy able to predict the pre-stress state of the cork agglomerate, due to the compression moulding process, has been presented in this work. The proposed approach is based on a two-step simulation of the compression moulding process as a sequence of a mould filling phase followed by a compression phase. The presence of the liquid-state resin is neglected in terms of volume fraction since it constitutes a thin film around particles. The main effect of the resin film being, at this stage, the minimisation of the friction coefficient between cork particles. Firstly, the geometric arrangement of cork particles within the mould has been predicted by means of an in-house code, coupled with a 2D physics engine, able to simulate the moulding filling phase. Once the starting geometric arrangement of cork particles is defined, the finite element model of the cork agglomerate and of the mould are generated. The compression phase of three classes of natural cork density (low, medium and high density), for two configurations of cork agglomerate (i.e. low and high packing density), has been simulated through an explicit dynamic analysis. The hyperelastic mechanical behaviour of cork has been modelled by means of the five term Mooney-Rivlin model.

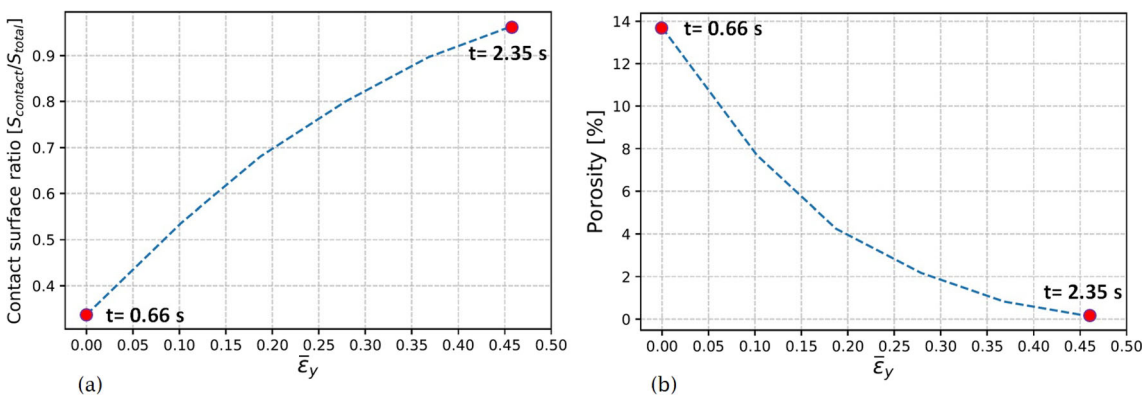


Fig. 14 Contact surface ratio (**a**) and porosity volume fraction (**d**) from t=0.66 s t=2.35 s

For all case studies, the time-dependent stress-strain and density curves of the agglomerates have been evaluated. The high packing density configuration of the agglomerate always allows achieving an internal stress and density (for the same average strain) higher than those of the low packing density configuration.

Then, the tangent modulus of the agglomerate (for each considered configuration) is compared to that of the natural cork, at the same applied strain. Results show that the tangent modulus of the agglomerate in the high packing density configuration is always higher than that of the agglomerate in low packing density configuration. Moreover, the tangent modulus obtained with a high packing density configuration, at the end of the compression phase, is also higher to that of low density and medium density natural cork. This result is of paramount importance since it shows that a proper packing density configuration of the agglomerate can let achieve a higher stiffness of the resulting composite (compared to that of natural cork) with a considerably lower density material. This is due to the different absolute volume fraction of cork achieved with the two different packing configurations as well as to the interaction between particles in the specific high packing density arrangement which acts positively on the stress field. These results highlight the importance of selecting a proper particle size mixing to maximise packing density in order to improve the cork agglomerate overall stiffness.

Finally, a time-dependent particles contact surface and porosity analysis during the compression stage, has highlighted the correlation between the trend of stress-strain curves and the particles contact surface-strain curve of the granular material. As far as prospects of this work are concerned, research is ongoing on the post-curing phase and the homogenisation of mechanical properties of compression moulded cork agglomerates in order to properly predict its equivalent non-linear behaviour at the macroscopic scale by integrating the effect of the process parameters. A further prospect could focus on the development of a suitable data-driven model of the moulding process for cork-based agglomerates. In particular, the numerical results obtained by means of the proposed model (the density-strain curves and the compression stress-strain curves of the granular material at different pressure values) could be exploited to create a metamodel in the form of a response hyper-surface (which can be obtained through different metamodeling techniques available in the literature) describing the output quantities, i.e. the stress field, the strain field and the final density of the cork-based agglomerate, as a function of the input parameters, namely the process parameters (e.g. pressure value, curing temperature and time, cooling time, mould geometry, etc.) the material properties of the cork particles, the material properties of the resin matrix, the matrix volume fraction, the average size of the cork grains and the related standard deviation.

Acknowledgements The first author is grateful to the Nouvelle-Aquitaine region, Lièges HPK and SAFRAN Power Units for their contribution to this work through the LIAMA project.

Declarations

Acknowledgements The authors declare that they have no conflict of interest.

References

1. Alfonso D, Alves de Sousa R, Torcato R, Pires L (2019) Incremental forming as a rapid tooling process. Springer International Publishing, Berlin
2. Anjos O, Pereira H, Rosa ME (2008) Effect of quality, porosity and density on the compression properties of cork. Holz als Roh - und Werkstoff 66(4):295–301
3. Anjos O, Rodrigues C, Morais J, Pereira H (2014) Effect of density on the compression behaviour of cork. Mater Des 53:1089–1096
4. ANSYS I (2019) Workbench User's Guide. Canonsburg, PA 15317. 18 edn.
5. Baer M (2002) Modeling heterogeneous energetic materials at the mesoscale. Thermochim Acta 384(1):351–367
6. Baraff D (1989) Analytical methods for dynamic simulation of non-penetrating rigid bodies. In: Proceedings of the 16th annual conference on Computer graphics and interactive techniques, ACM Digital Library, pp 223–232
7. Benson D, Tong W, Ravichandran G (1995) Particle-level modeling of dynamic consolidation of ti-SiC powders. Model Simul Mater Sci Eng 3(6):771–796
8. Blomqvist V (2020). Pymunk. http://www.pymunk.org/, (Last accessed: 2020-05-28)
9. Borg JP, Vogler TJ (2008) Mesoscale calculations of the dynamic behavior of a granular ceramic. Int J Solids Struct 45(6):1676–1696
10. Catapano A, Jumel J (2015) A numerical approach for determining the effective elastic symmetries of particulate-polymer composites. Compos B Eng 78:227–243
11. Crawford DA (2006) Using mesoscale modeling to investigate the role of material heterogeneity in geologic and planetary materials. AIP Conf Proc 845(1):1453–1457
12. De Larrard F (1999) Concrete mixture-proportioning: a scientific approach. CRC Press, Boca Raton
13. Delucia M, Catapano A, Montemurro M, Pailhès J (2019) Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates. J Reinf Plast Compos 38(16):760–776
14. Delucia M, Catapano A, Montemurro M, Pailhés J (2020) A stochastic approach for predicting the temperature-dependent elastic properties of cork-based composites. Mech. Mater. 145
15. Fátima Vaz M, Fortes MA (1998) Friction properties of cork. J Mater Sci 33:2087–2093
16. Gentieu T (2018) Development of filled polymers for the replacement of ceramics used as ballistic protection layer. PhD thesis, Université de Bordeaux, Oxford Brookes University
17. Gentieu T, Catapano A, Jumel J, Broughton J (2017) Computational modelling of particulate-reinforced materials up to high volume fractions: Linear elastic homogenisation. Proc Inst Mech Eng Pt L J Mater Des Appl 233(6):1101–1116

18. Gibson LJ, Easterling KE, Ashby MF (1981) The Structure and Mechanics of Cork. Proceedings of the Royal Society A: Mathematical. Phys Eng Sci 377(1769):99–117
19. Guendelman E, Bridson R, Fedkiw R (2003) Nonconvex rigid bodies with stacking. ACM Trans Graph 22(3):871–878
20. Huang F, An X, Zhang Y, Yu A (2017) Multi-particle FEM simulation of 2d compaction on binary al/sic composite powders. Powder Technol 314:39–48. special Issue on Simulation and Modelling of Particulate Systems
21. Jardin R, Fernandes F, Pereira A, Alves de Sousa R (2015) Static and dynamic mechanical response of different cork agglomerates. Mater Des 68:121–126
22. Kim S (2011) A study on cork-based plastic composite material. Master's thesis, Massachusetts Institute of Technology
23. Kwan A, Chan K, Wong V (2013) A 3-parameter particle packing model incorporating the wedging effect. Powder Technol 237:172–179
24. Kwan A, Wong V, Fung W (2015) A 3-parameter packing density model for angular rock aggregate particles. Powder Technol 274:154–162
25. Le Barbenchon L, Girardot J, Kopp J, Viot P (2013) Strain rate effect on the compressive behaviour of reinforced cork agglomerates. In: EPJ Web of Conferences, vol 183, pp 1–6
26. Lowe CA, Greenaway MW (2005) Compaction processes in granular beds composed of different particle sizes. J Appl Phys 98(12):123519
27. Mooney M (1940) A theory of large elastic deformation. J Appl Phys 11:582–592
28. Moszumanski R, Trzepiecinski T (2018) FEM numerical analysis of the compaction of a mixture of brake pad components taking account of the real shapes and dimensions of particles. Met Mater 56:357–366
29. Nesterenko VF (2001) Dynamics of heterogeneous materials. Springer, New York
30. Pereira H (2007) Cork: biology, production and uses. Elsevier, Amsterdam
31. Santos PT, Pinto S, Marques PA, Pereira AB, Alves de Sousa RJ (2017) Agglomerated cork: A way to tailor its mechanical properties. Compos Struct 178:277–287. https:doi.org/10.1016/j.compstruct.2017.07.035
32. Williamson RL (1990) Parametric studies of dynamic powder consolidation using a particle-level numerical model. J Appl Phys 68(3):1287–1296
33. Yano K, Horie Y (1999) Discrete-element modeling of shock compression of polycrystalline copper. Phys Rev B 59:13672–13680
34. Yu A, Bridgwater J, Burbidge A (1997) On the modelling of the packing of fine particles. Powder Technol 92(3):185–194
35. Zhang YX, An XZ, Zhang YL (2015) Multi-particle FEM modeling on microscopic behavior of 2d particle compaction. Appl Phys A 118:1015–1021

Publisher's note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

Chapitre 5

Conclusions et perspectives

Les travaux menés au sein de cette thèse de doctorat ont visé à apporter une première contribution à la compréhension du comportement des agglomérés de liège et au développement de nouvelles méthodes de conception, basées sur des approches systématiques, à travers le développement de modèles multi-échelle et multi-physiques de l'aggloméré.

5.1 Conclusions générales

Le travail de thèse est focalisé sur les agglomérés blancs, principal matériau produit par la société Lièges HPK. Dans le but de comprendre le comportement thermomécanique local à l'échelle mesoscopique des granules de liège et d'étudier l'influence de certains paramètres de conception sur les propriétés thermoélastiques de l'aggloméré à l'échelle macroscopique, le développement d'un modèle haute-fidélité de l'aggloméré à l'échelle mesoscopique a été le premier objectif du travail de thèse. L'état de l'art présenté au Chapitre 1 montre l'ensemble des problèmes et difficultés scientifiques liés à l'élaboration d'un tel modèle. L'observation au microscopique de différents agglomérés de liège fabriqués par Lièges HPK a montré que, en moyen, les particules de liège ont une forme polygonale et une disposition aléatoire au sein de l'aggloméré. De plus, comme montré par Gibson [1], dans le domaine linéaire-élastique le liège présente une symétrie circulaire le long de l'axe radial, raison pour laquelle il peut être considéré comme un matériau transversalement isotrope.
Toutes ces caractéristiques ont été prises en compte pendant le développement du premier modèle paramétrique de l'aggloméré à l'échelle mésoscopique présenté au Chapitre 2.
La première partie du travail a été consacrée à la création d'une mésostructure réaliste de l'aggloméré. A cette fin, le choix est tombé sur l'algorithme de tesselation de Voronoi pour créer un nombre défini de particules polygonales convexes de taille variable. Ensuite, un facteur d'échelle est appliqué aux polygones afin de créer la phase relative à la résine et d'obtenir un VER final avec une fraction volumique de résine bien définie. Par la suite, un algorithme *ad-hoc* a été développé afin de pivoter chaque polygone et obtenir un modèle du VER caractérisé par une orientation géométrique aléatoire des particules de liège. À partir du modèle géométrique, le modèle EF du VER de l'aggloméré est créé.
Étant le premier travail de thèse, le modèle présente plusieurs limites. En particulier, le modèle géométrique ne prend pas en compte la porosité à l'interface entre les particules, la présence de particules concaves et la variabilité des propriétés du liège. De plus, l'influence du procédé de fabrication sur les propriétés finales de l'aggloméré et le comportement non-linéaire du liège ne sont pas considérés. Le modèle ainsi créé, avec toutes les

limites énoncées ci-dessus, permet en tout cas de construire des modèles EF semi-réalistes de l'aggloméré à l'échelle mésoscopique, d'analyser le comportement local et d'évaluer, à la fois qualitativement et quantitativement, l'influence de certains paramètres de conception tels que le fraction volumique des phases, la variabilité de la taille des particules de liège, les propriétés du liège et de la résine et l'orientation géométrique des particules sur les propriétés thermoélastiques de l'aggloméré. En plus, dans le cas où le procédé de fabrication n'affecte pas significativement les propriétés mécaniques finales de l'aggloméré, tel que l'ensachage sous vide décrit au Chapitre 1, les résultats numériques obtenus, au moyen de la stratégie d'homogénéisation développée, montrent une excellente corrélation avec ceux expérimentaux.
Le Chapitre 3 de la thèse se focalise sur le développement d'une stratégie d'homogénéisation, basée sur une approche stochastique, pour déterminer les propriétés élastiques de l'aggloméré en fonction de la température et compte tenu de la variabilité des propriétés élastiques du liège naturel.
Tout d'abord, en continuité avec le Chapitre 2, le modèle numérique 2D a a été généralisé. Les nouvelles fonctionnalités ajoutées à l'algorithme de génération de la mésostructure de l'aggloméré ont permis de créer une géométrie du VER constituée par des particules à la fois concaves et convexes et d'ajouter la présence de porosités. À cette fin, un algorithme *ad-hoc* a été développé dans le but de joindre, via une opération booléenne, plusieurs paires de particules générées par la tesselation de Voronoi afin de créer une nouvelle particule concave. L'opération d'union est réalisée avant d'appliquer le facteur d'échelle qui permet de générer la phase relative à la résine. Le nombre et la taille des nouvelles particules concaves est défini par paramètres spécifiques.
En ce qui concerne la génération de la présence de porosité, plusieurs problèmes ont été rencontrés en raison de la mésostructure typique de l'aggloméré de liège. Dans une première approche, un algorithme a été développé pour générer la présence de porosité en appliquant la même procédure adoptée dans le travail de Catapano et Jumel [86] où une opération boolean de soustraction est réalisée entre la géométrie de la résine et un nombre spécifique de circonférences générées aléatoirement. Généralement, pour le cas des composites à base de liège, la fraction volumique de la résine est très faible. Malheureusement, étant donné le faible épaisseur et la forme complexe de la géométrie de la résine, des erreurs topologiques sont apparues très souvent pendant l'opération de soustraction. Pour cette raison, un nouveau algorithme a été conçu et développé. La porosité est générée après la création du modèle EF de l'aggloméré dans le code décrit au Chapitre 3 qui permet d'éliminer un nombre défini d'éléments afin d'obtenir la fraction volumique de porosité souhaitée. De plus, compte tenu de la géométrie complexe du VER, des difficultés de réalisation du maillage ont été rencontrées. Pour cela, un algorithme spécifique a été créé afin de créer un maillage de façon automatique.
Afin d'évaluer les limites de l'utilisation d'un modèle 2D de l'aggloméré, un modèle 3D a été développé et présenté. Un algorithme *ad-hoc* a été développé, toujours basé sur la tesselation de Voronoi. Dans ce cas, l'utilisation de l'outil FreeCAD a été un choix décisif qui a permis de créer un modèle paramétrique 3D, ayant exactement les mêmes caractéristiques que le modèle 2D amélioré, directement par le langage de programmation Python.
Ensuite, une stratégie d'homogénéisation basée sur une approche stochastique a été développée. Le manque de données relatives à la distribution de la variabilité des propriétés élastiques du liège naturel à été surmonté via l'hypothèse d'une distribution gaussienne des propriétés mécaniques du liège comme pour le cas de nombreux matériaux naturels.
L'influence de la variabilité des données d'entrée du modèle, sur le comportement élastique

équivalent de l'aggloméré de liège, a été étudiée par l'application de la méthode de Monte Carlo. L'écart type de la distribution des résultats tend à diminuer avec l'augmentation de la température (comme pour le cas du liège naturel). La variabilité des propriétés élastiques des composites à base de liège est moins importante que celle du liège naturel et, donc, l'aggloméré de liège présente des propriétés élastiques plus stables que le liège naturel, ce qui constitue un nouveau résultat dans la littérature.
Une limite de la stratégie d'homogénéisation présentée est certainement liée au temps de génération du modèle et de calcul nécessaire assez élevé, notamment pour le cas 3D. Ceci est dû, en particulier, à la complexité de la géométrie du VER de l'aggloméré, et par conséquent du maillage.
Comme décrit au Chapitre 1, le procédé de fabrication le plus utilisé, dans la production des agglomérés de liège, est le moulage par compression. L'une des étapes les plus importantes du processus est la phase de compression du mélange de particules de liège et de résine, car, grâce à un choix approprié de la pression à appliquer, il est possible d'obtenir un aggloméré final avec une densité souhaitée. L'objectif du travail présenté dans le Chapitre 4 est la détermination de l'état de pré-contrainte au sein de l'aggloméré à travers la simulation du processus initial de compression.
La première partie du travail a été consacrée à la modélisation du granulé de liège (la présence de la résine, un film mince autour des particules, a été négligée) à l'intérieur du moule. Il a donc été nécessaire de simuler la phase de remplissage de la façon la plus réaliste possible. Afin de simuler la chute des particules, un code *ad-hoc* a été développé. Tout d'abord, les particules polygonales de liège sont créées par la tesselation du Voronoi en exploitant les codes présentés dans les Chapitres 2 et 3. Par la suite, les particules sont laissées tomber de positions aléatoires dessus le moule à l'aide de Pymunk, un moteur physique 2D développé sur Python. La stratégie ainsi développée permet de simuler rapidement la phase de remplissage du moule (la simulation de chute d'environ 200 particules de liège en 1 minute). Malheureusement, le résultat final n'est pas directement exploitable car, comme c'est le cas de tous les moteurs physiques, les polygones ont tendance à s'entrecroiser. Pour cela, un léger facteur d'échelle a été appliqué aux particules afin d'éliminer l'intersection géométrique. Une fois la disposition initiale des particules définie, le modèle EF du matériau granulaire a été créé afin de simuler le processus de compression. Pendant la phase de compression, une charge dynamique de quelques secondes est appliquée au matériau granulaire. A ce stade, le choix du modèle matériau plus approprié pour le liège naturel a été effectué. Comme montré dans le travail de Anjos et al. [10], le liège naturel a un comportement en compression hyperélastique qui varie selon la direction radiale, axiale et tangentielle. Parmi les différents modèles hyperélastiques présents sur Ansys, le modèle Mooney–Rivlin à cinq paramètres, pour les matériaux isotropes et incompressibles, est celui qui permet de mieux reproduire le comportement non-linéaire du liège. Dans le but d'utiliser ce modèle, un comportement isotrope équivalent a été déterminé. Un modèle EF du moule et du granulé a été construit pour deux cas de remplissage (haute et faible densité du moule) et trois densités moyennes du liège naturel. Le module tangent de l'aggloméré (pour chaque configuration considérée) a été comparé à celui du liège naturel pour la même déformation appliquée. Les résultats montrent que le module tangent de l'aggloméré pour le cas de configuration à haute densité de remplissage est supérieur à celui du liège naturel de faible et moyenne densité. Ce résultat intéressant permet d'identifier un avantage supplémentaire dans l'utilisation des agglomérés : un choix opportun des distributions de tailles des particules du granulé peut permettre d'obtenir une rigidité plus élevée du composite résultant, par rapport à celle du liège naturel, avec un matériau de densité considérablement plus faible. Il s'agit d'informations importantes

du point de vue de la conception du matériau.
En revanche, les résultats numériques ont montré une limitation du modèle EF. En effet, dans toutes les simulations réalisées, pour des états de déformation du matériau granulaire supérieurs à 45%, les particules polygonales de liège ont tendance à se compénétrer. Ceci est dû à la déformation excessive des polygones qui peut engendrer des problèmes de compénétration pendant la simulation. Malheureusement, cela on n'a pas permis d'évaluer l'état de contrainte au sein du granulé au-delà d'une déformation appliquée de 45%. Ceci dit, une analyse des surfaces de contact et de la porosité permet de supposer que le comportement du matériau granulaire est proche de celui du liège pour des déformations supérieures à 45%.

5.2 Perspectives

Les perspectives de ces travaux de thèse peuvent être classées en deux catégories :

1. perspectives liées à une amélioration des modèles numériques dans un logique de génération de jumeaux numériques (p.ex. du composite ou encore du procédé);

2. perspectives liées à une exploitation des résultats obtenus dans une logique de développement de modèles rapides et efficaces à être intégrés dans une démarche de conception de l'aggloméré.

Il est tout à fait évident que les résultats obtenus grâce à ces travaux sont déterminés dans un contexte très générale des agglomérés à base de liège et pas liés à une application spécifique. Ceci dit, les modèles présentés ne peuvent pas être utilisés directement pendant la phase de conception du matériau, dans une logique bureau d'étude, compte tenu de leur coût de calcul élevé. Une synthèse des utilisations possibles des résultats obtenus dans ce travail de thèse est illustrée dans la Fig. 5.1.
Si on se place dans une logique d'amélioration des modèles présentés, plusieurs actions peuvent être envisagées :

1. l'introduction d'un modèle à l'échelle microscopique (échelle des parois de cellules de liège) afin de tenir compte de l'influence des phénomènes typiques, tels que le flambage des parois de la cellule, sur les échelles supérieures;

2. l'amélioration du modèle à l'échelle mésoscopique (Chapitre 3) via l'introduction de phénomènes physiques importants tels que la présence d'une couche d'inter-phase entre les granules de liège (véritable mélange de résine, débris de liège et parois externes des particules de liège) ou encore la prise en compte d'un comportement à gradient de propriétés des particules de liège (afin de modéliser l'écrasement progressif des cellules du centre vers la périphérie des particules), voir Fig. 1.20;

3. modélisation multiphysique du comportement du liège via l'implémentation d'une loi de comportement de type hygro-thermo-mécanique.

D'ailleurs, dans une logique d'intégration des résultats présentés dans une démarche de conception, une première action concerne l'exploitation des résultats présentés dans les Chapitres 3 et 4. En fait, les courbes contrainte-déformation et densité-déformation, dépendants du temps et à différents états de déformation, peuvent être exploitées pour prédire la pression à appliquer, sur le mélange de liège et résine, pendant la phase de

compression afin d'atteindre la densité souhaitée de l'aggloméré, devenant un support valable dans la phase de production. Toujours dans une logique de conception et donc de développement de modèles rapides, le travail présenté au Chapitre 4 pourrait évoluer vers un modèle approprié du processus de moulage par compression. En particulier, les courbes contrainte-déformation et densité-déformation du granulé pourraient être exploités pour créer un métamodèle sous la forme d'une hyper-surface de réponse décrivant les grandeurs de sortie, c'est-à-dire le champ de contrainte, le champ de déformation et la densité finale de l'aggloméré à base de liège, en fonction des paramètres d'entrée.
En deuxième lieu, les courbes contrainte-déformation du granulé (Chapitre 4) peuvent être utilisées comme donnée d'entrée d'une démarche d'homogénéisation non-linéaire de l'aggloméré à l'issue du procédé de fabrication. Dans ce contexte, une démarche d'homogénéisation non-linéaire analytique représenterait un bon choix pour le développement d'une méthode de conception systématique des agglomérés de liège fabriqués au moyen du moulage par compression. L'utilisation d'une méthode analytique d'homogénéisation non-linéaire permettrait de réduire considérablement les temps de calcul ainsi qu'une meilleure exploitation en bureau d'étude. Plusieurs travaux sont présents dans la littérature sur le développement de stratégies d'homogénéisation non-linéaire analytiques comme montré dans le Chapitre 1. Dans certains de ces travaux, l'approche utilisé est potentiellement adapté au cas des agglomérés de liège. Par exemple, Gentieu *et al.* [112] ont décrit le décollement progressif des inclusions dans le cas des composites renforcés par des particules. À cette fin, les interfaces ont été modélisées par un modèle de zone cohésive bilinéaire et le schéma d'homogénéisation à champs moyennes de Mori-Tanaka a été enrichi afin de prendre en compte des interfaces imparfaites. Zeka *et al.* [113] ont déterminé les propriétés mécaniques équivalents d'un composite biphasé, constitué d'une matrice polyuréthane, contenant des inclusions sphériques poreuses à base de silicone. Tout d'abord, une énergie homogénéisée pour les inclusions sphériques a été obtenue par une méthode explicite. Ensuite, la méthode tangente du second ordre [114] a été appliquée afin de déterminer la densité d'énergie élastique équivalente du composite.
La développement d'une démarche d'homogénéisation analytique, capable de prendre en compte les spécificités des travaux cités ci-dessus ainsi que les résultats préliminaires présentés dans ce manuscrit, représenterait une contribution importante à la mise en place d'une méthode de conception rapide et efficace pour les agglomérés à base de liège.

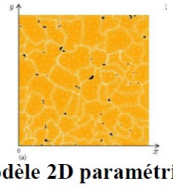
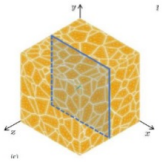
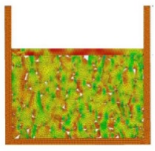
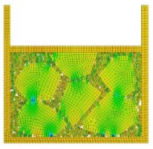
	MODÈLES	RÉSULTATS OBTENUS	UTILISATIONS POSSIBLES
CHAPITRE 2	 **Modèle 2D paramétrique**	Evaluation de l'influence de la fraction volumique de résine et de la variabilité de la taille des particules de liège sur les propriétés thermoélastiques de l'aggloméré.	Lignes directrices pour le cas de conception de l'aggloméré par la méthode essai/erreur dans une logique bureau d'étude .
CHAPITRE 3	 **Modèle 2D paramétrique amélioré**  **Modèle 3D paramétrique amélioré**	Evaluation de l'influence de la variabilité des propriétés élastiques, dépendant de la température, du liège naturel, sur celles de l'aggloméré. Principaux résultats obtenus : • La rigidité de l'aggloméré de liège diminue avec l'augmentation de la température; • Les composites à base de liège présentent une meilleure stabilité des propriétés élastiques que le liège naturel.	Lignes directrices pour le cas de conception de l'aggloméré par la méthode essai/erreur dans une logique bureau d'étude.
CHAPITRE 4	 **Modèle paramétrique pour simuler la phase de remplissage**   **Modèles pour simuler la phase de compression**	Evaluation de l'état de contrainte du granulé, pendant la phase de compression. Analyse de la surface de contact des particules et de la porosité au cours de l'étape de compression pour un cas d'étude. Principaux résultats obtenus : • Courbes contrainte-déformation et densité-déformation du granulé dépendantes du temps; • Importance de sélectionner un mélange de la granulométrie approprié pour maximiser la densité de remplissage afin d'améliorer la rigidité globale de l'aggloméré final; • Analyse de la surface de contact des particules et de la porosité au cours de l'étape de compression.	<u>Courbes contrainte-déformation et densité-déformation :</u> • Détermination de la pression à appliquer, sur le mélange de liège et résine, pendant la phase de compression afin d'atteindre la densité finale de l'aggloméré souhaitée; • Données de base pour la création d'un métamodèle sous la forme d'une hyper-surface décrivant les grandeurs de sortie, c'est-à-dire le champ de contrainte, le champ de déformation et la densité finale de l'aggloméré à base de liège; • Données d'input dans une méthode systématique de conception du matériau. <u>Analyse de la surface de contact et de la porosité :</u> • Contribution pour les études sur les phénomènes d'interface et d'adhésion entre les particules et la résine.

Figure 5.1: Utilisations possibles des résultats obtenus par les différents travaux de thèse.

Annexe A

Chapitre 2 - Analyses de convergence

Une analyse de convergence a été réalisée sur la taille du maillage et du VER, dans le cadre de l'étude numérique (Numerical study) présentée au Chapitre 2, par rapport au comportement macroscopique équivalent de l'aggloméré. Concernant la taille du maillage, les valeurs numériques des coefficients de la matrice de rigidité Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss}, pour les trois tailles de VER analysées (10, 90 et 180 mm^2) sont illustrées en Fig. 5.2-5.4. La convergence des propriétés élastiques est atteinte pour une valeur de la densité du maillage égale à 2779 éléments/mm^2. Ensuite, dix-sept valeurs de la taille du VER ont été analysés et, pour chacun d'eux, dix mésotructures ont été générées à l'aide d'une densité du maillage fixée à 2779 éléments/mm^2. Les valeurs numériques des coefficients de la matrice de rigidité Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss}, illustrées en Fig. 5.5, ont été analysées en se focalisant sur l'écart type. Un intervalle de tolérance, ne dépassant pas 1%, a été adopté pour l'écart type de chaque propriété élastique afin de fixer la taille minimale du VER. La convergence est atteinte pour une taille du VER égale à 130 mm^2.
Concernant le cas d'étude (Case study) présenté au Chapitre 2, une analyse de convergence a été réalisée pour déterminer la taille du VER capable de représenter le comportement macroscopique élastique de l'aggloméré. Cinq valeurs de taille du VER ont été analysées et, pour chacun d'eux, dix mésostructures ont été générées à l'aide d'une densité du maillage égale à 2779 éléments/mm^2 évaluée dans le cadre de l'étude numérique. Une taille maximale du VER de 500 mm^2 a été analysée en raisons des temps de calcul élevés pour des tailles supérieures à celle-ci. Les propriétés des composants et la composition du VER sont illustrées dans les Tableaux 6 et 11 présents dans l'article. Les valeurs des coefficients de la matrice de rigidité Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss}, illustrées en Fig. 5.6, ont été analysées en se focalisant sur l'écart type. Un intervalle de tolérance, ne dépassant pas 1%, a été adopté pour l'écart type de chaque propriété élastique. La convergence est atteinte pour une taille du VER égale à 500 mm^2.

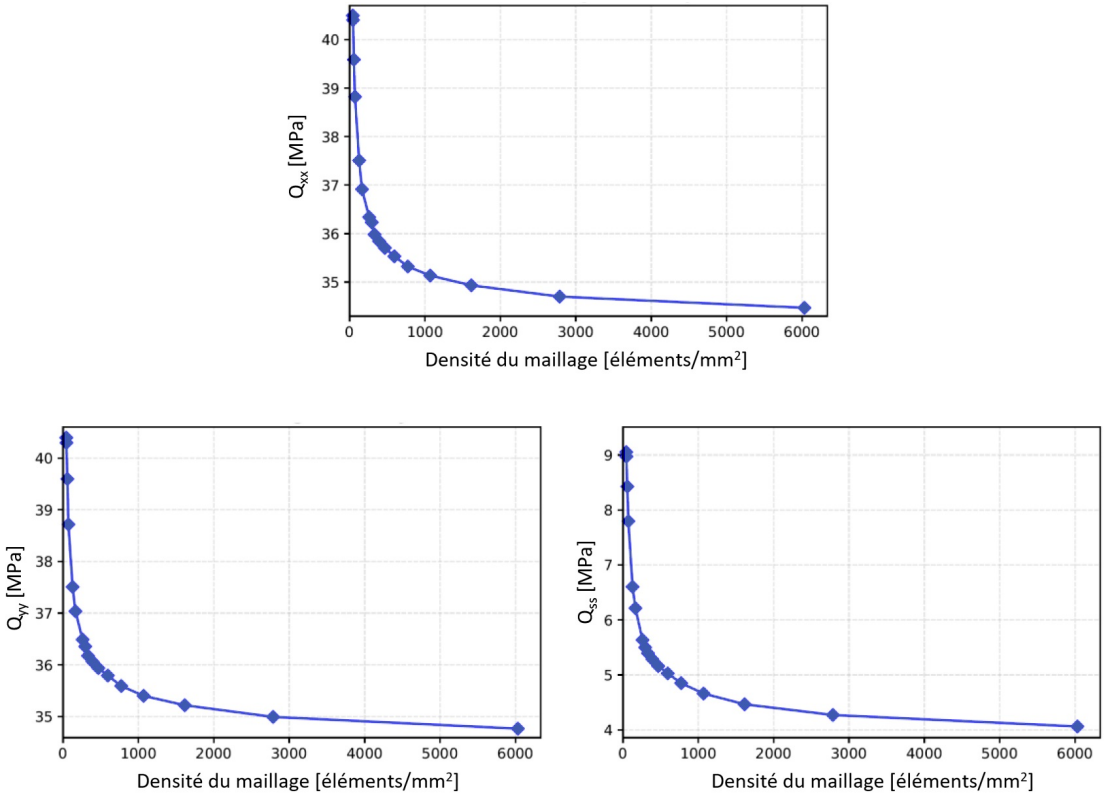


Figure 5.2: Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss} vs la densité du maillage pour un VER de 10 mm^2 (Étude numérique).

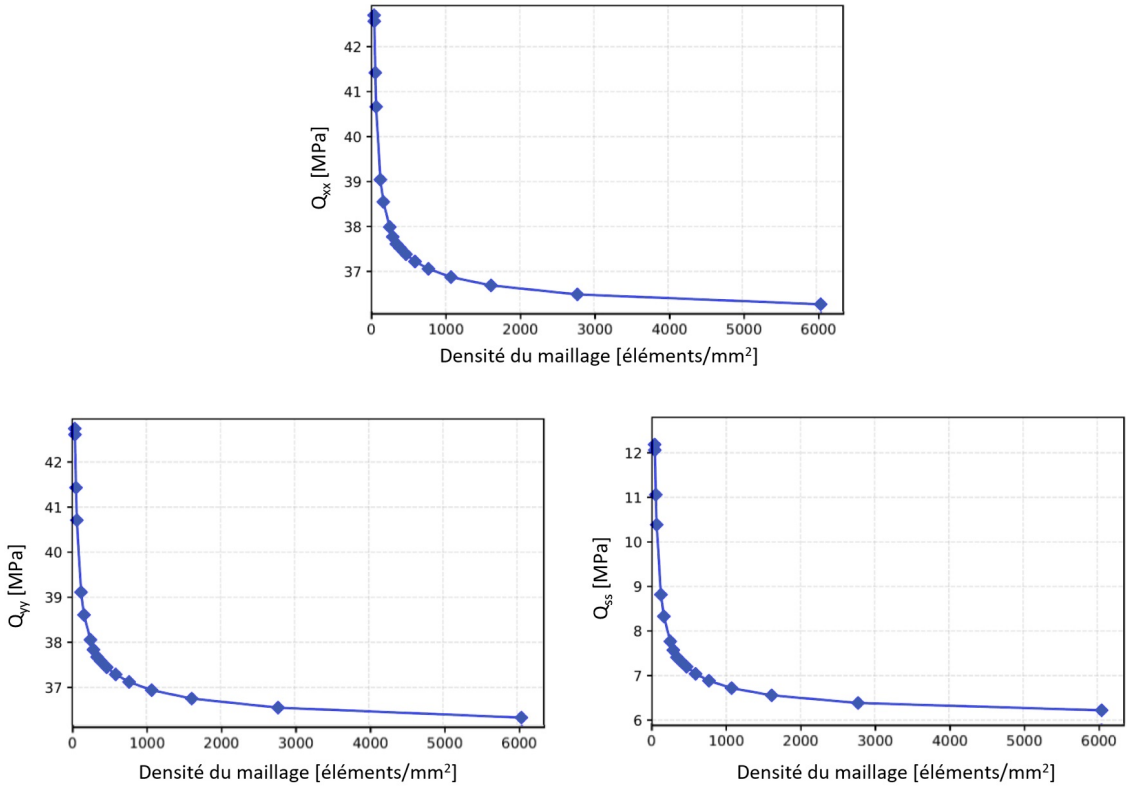


Figure 5.3: Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss} vs la densité du maillage pour un VER de 90 mm^2 (Étude numérique).

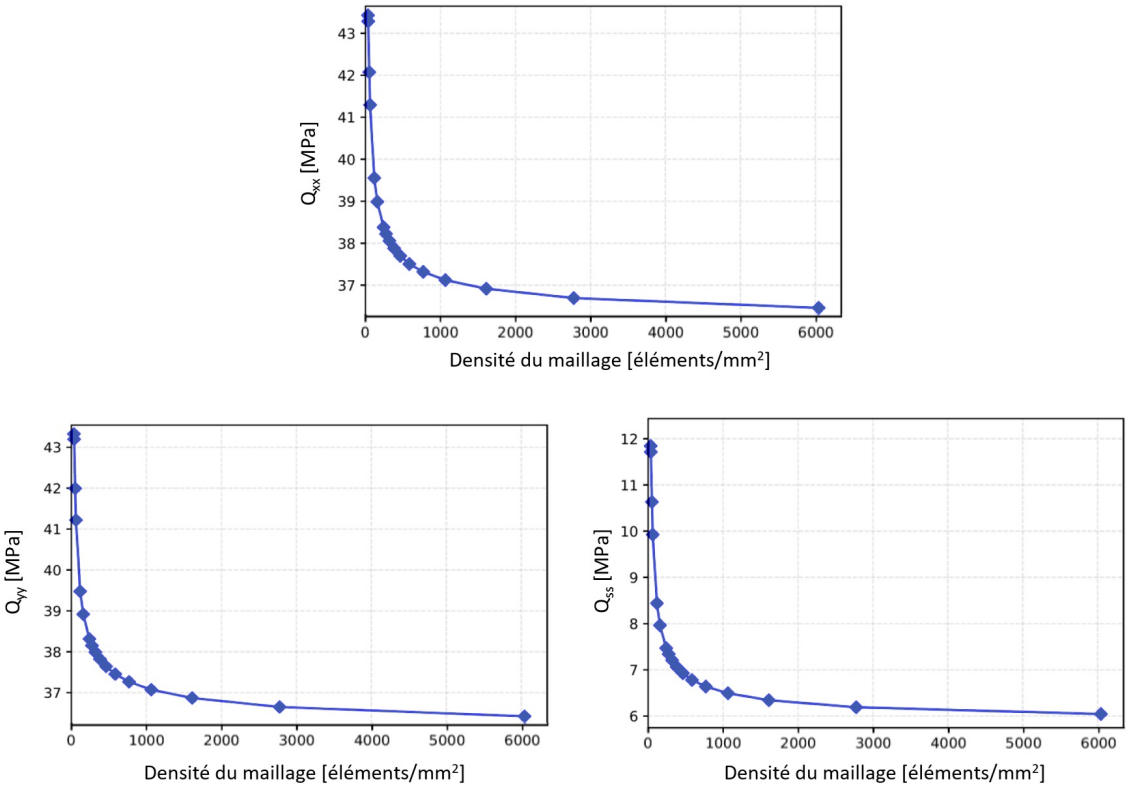


Figure 5.4: Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss} vs la densité du maillage pour un VER de 180 mm^2 (Étude numérique).

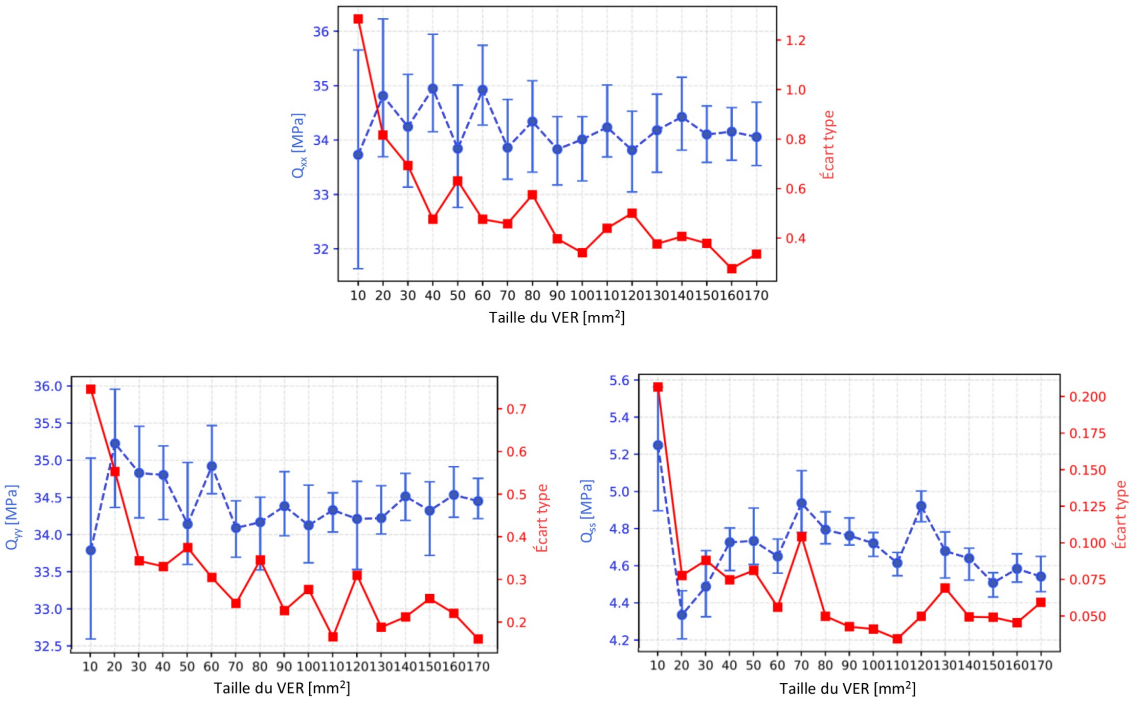


Figure 5.5: Q_{xx}, Q_{yy}, Q_{ss} et leur écart type vs la taille du VER (Étude numérique).

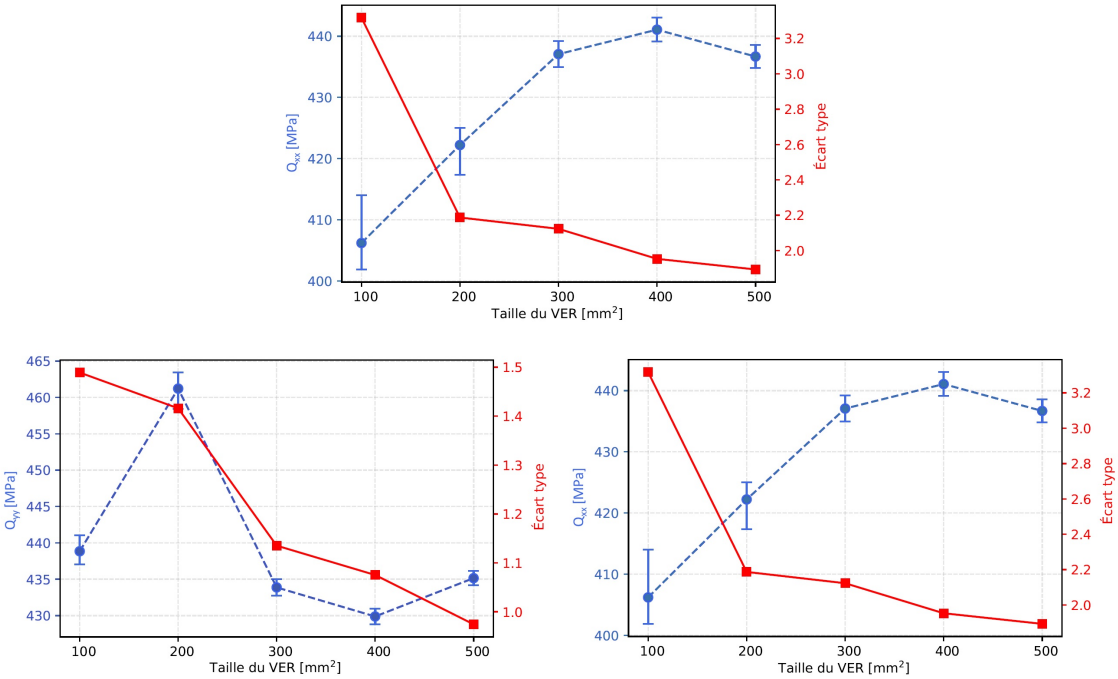


Figure 5.6: Q_{xx}, Q_{yy}, Q_{ss} et leur écart type vs la taille du VER (Cas d'étude).

Annexe B

Chapitre 3 - Analyses de convergence

Une analyse de convergence a été réalisée sur la taille du VER, par rapport au comportement macroscopique équivalent de l'aggloméré, dans le cadre de l'analyse numérique (Variability analysis of the equivalent temperature-dependent elastic properties) présentée au Chapitre 3 pour déterminer les propriétés élastiques dépendant de la température de l'aggloméré en considérant l'incertitude sur les propriétés élastiques du liège naturel. Dix valeurs de la taille du VER ont été analysées et, pour chacun d'eux, dix mésostructures ont été générées à la fois pour le cas 2D et 3D. La taille du maillage est déterminée de façon automatique à l'aide de l'algorithme 1 présenté dans l'article. Les propriétés des composants et la composition du VER sont illustrées dans les Tableaux 4 et 8 présents dans l'article. Pour le cas 2D, les valeurs des coefficients de la matrice de rigidité Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss}, illustrées en Fig. 5.7, ont été analysées en se focalisant sur l'écart type. Un intervalle de tolérance, ne dépassant pas 1%, a été adopté pour l'écart type de chaque propriété élastique. Dans le cas 2D la convergence est atteinte pour une taille du VER égale à 170 mm^2.

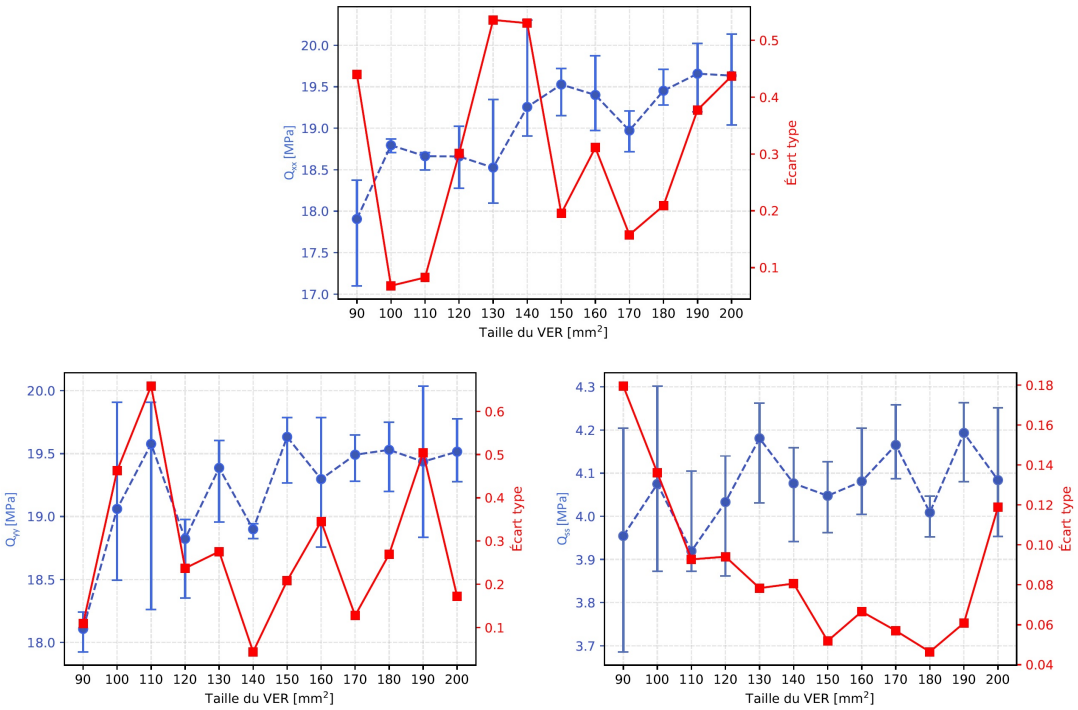


Figure 5.7: Q_{xx}, Q_{yy} et Q_{ss} vs la taille du VER (Cas 2D).

Pour le cas 3D, les valeurs des coefficients de la matrice de rigidité C_{xx}, C_{yy}, C_{zz},

C_{qq}, C_{rr} et C_{ss}, illustrées en Fig. 5.8, ont été analysées en se focalisant sur l'écart type. Dans le cas 3D la convergence est atteinte pour une taille du VER égale à 216 mm^3.

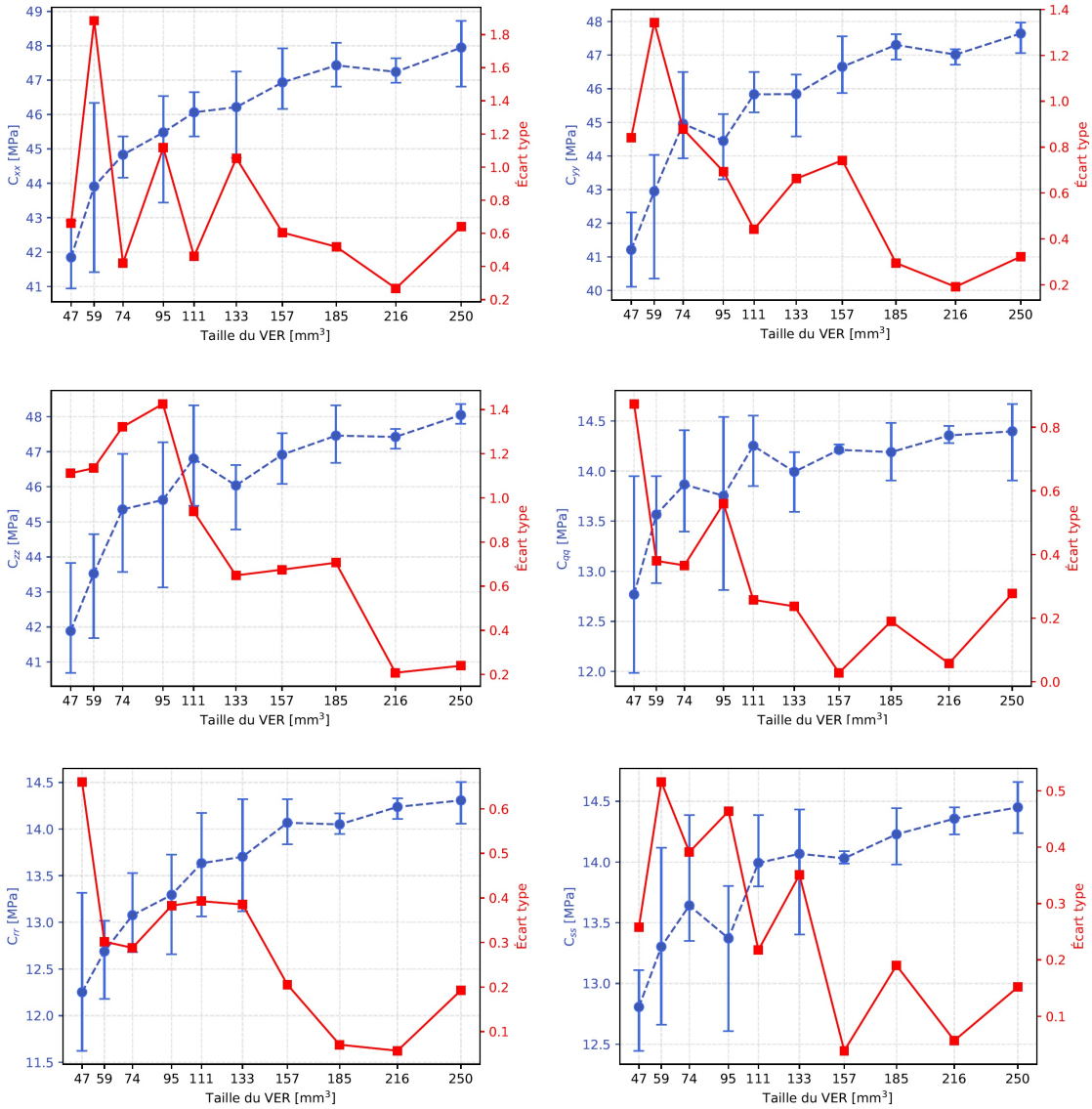


Figure 5.8: C_{xx}, C_{yy}, C_{zz}, C_{qq}, C_{rr} et C_{ss} vs la taille du VER (Cas 3D).

Annexe C

Chapitre 3 - Résultats numériques

La distribution des valeurs des constantes élastiques effectives à différentes températures, pour le cas 2D, sont illustrées dans les Figs. 5.9-5.12.

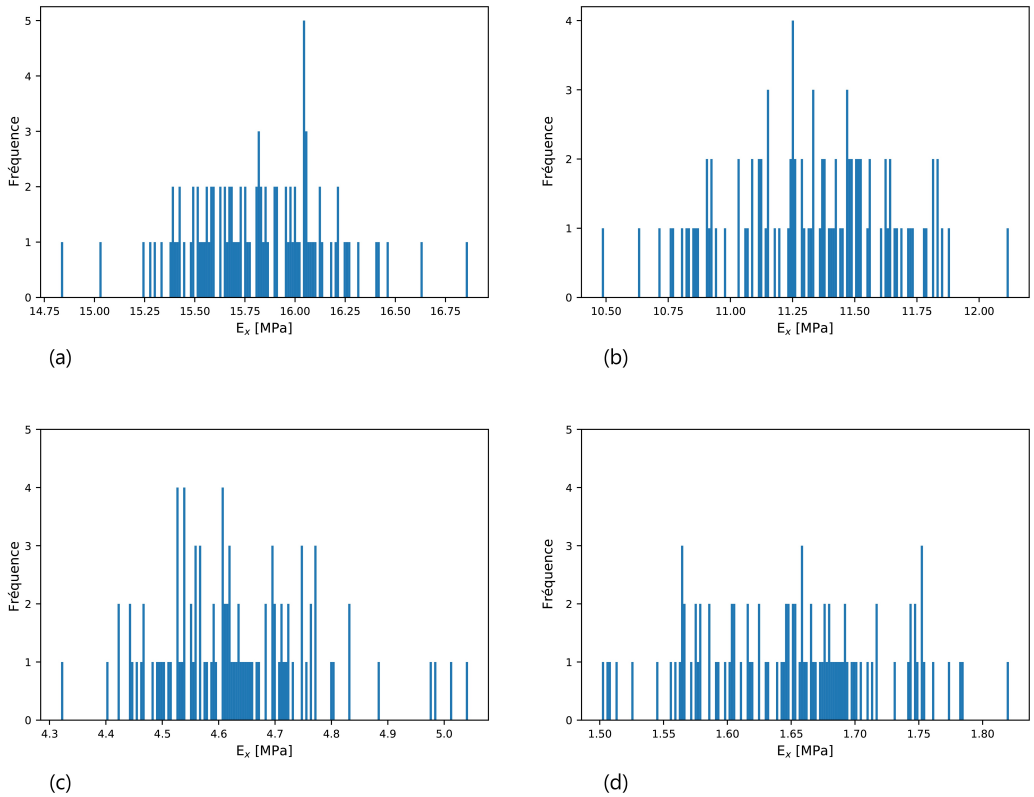


Figure 5.9: Distribution des valeurs du module d'Young E_x à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 2D.

Pour le cas 3D, la distribution des constantes élastiques effectives, à différentes températures, sont illustrées dans les Figs. 5.13-5.21.

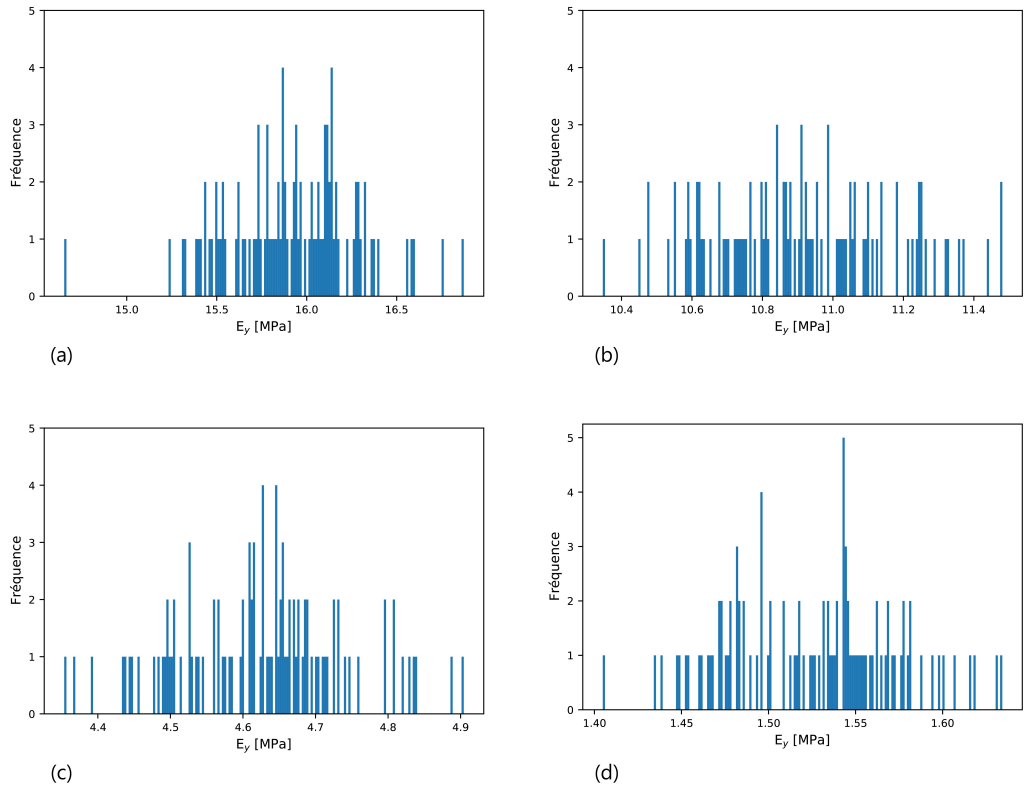


Figure 5.10: Distribution des valeurs du module d'Young E_y à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 2D.

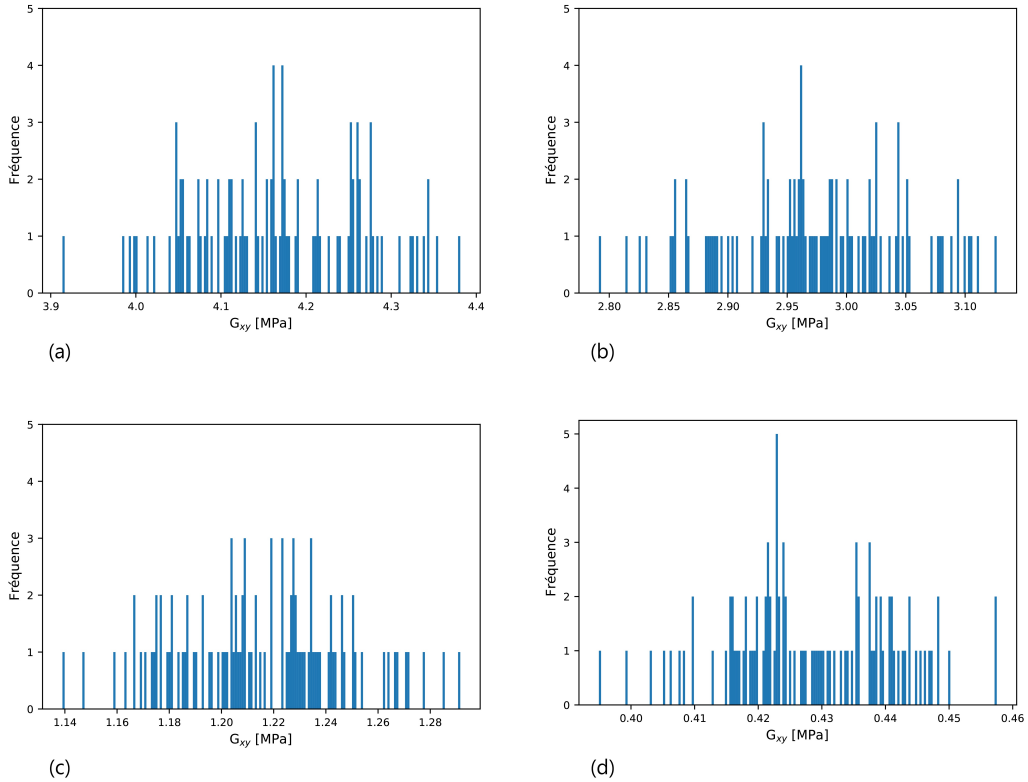


Figure 5.11: Distribution des valeurs du module de cisaillement G_{xy} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 2D.

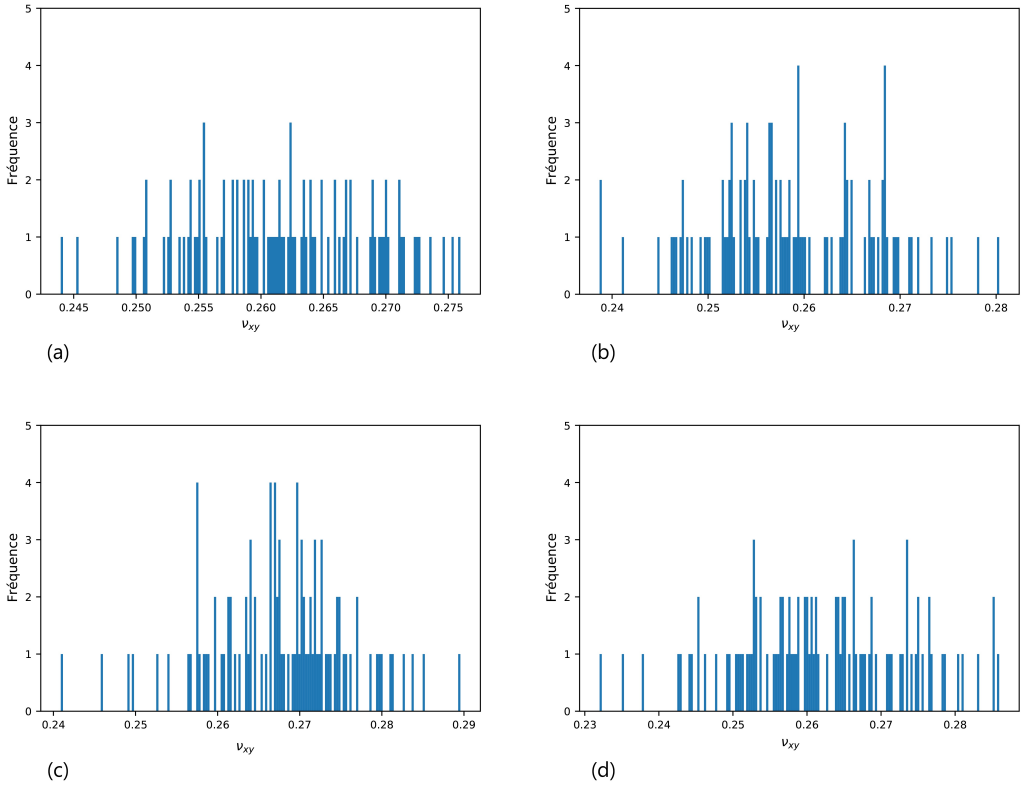


Figure 5.12: Distribution des valeurs du coefficient de Poisson ν_{xy} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 2D.

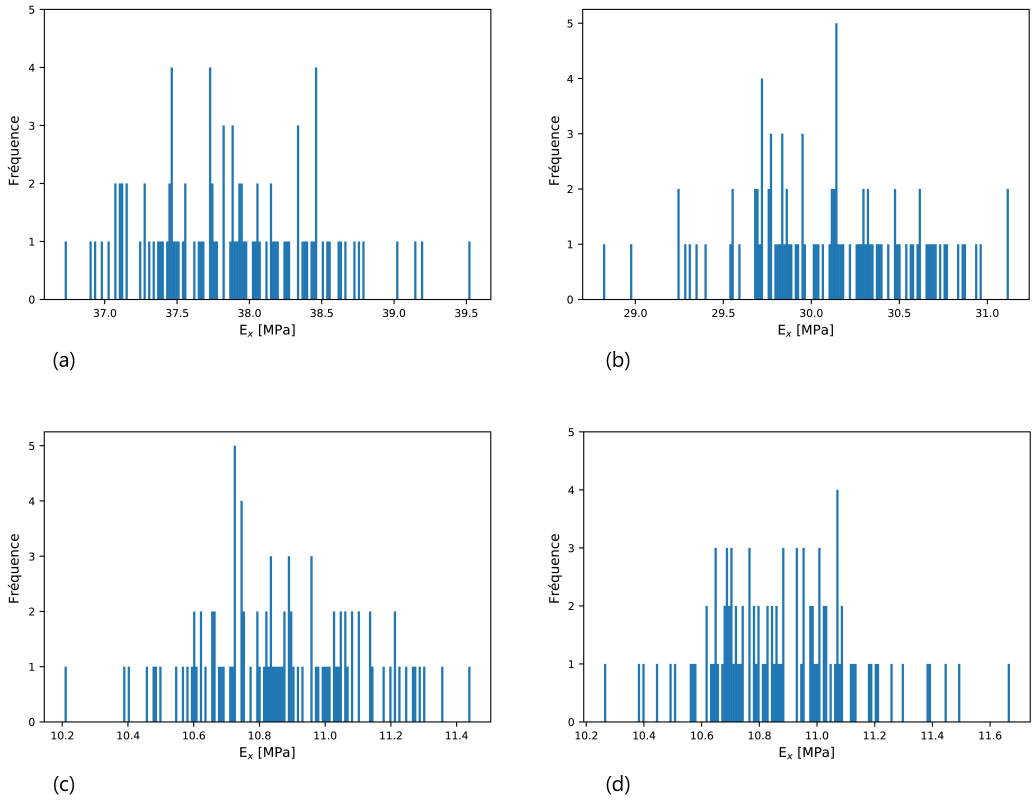


Figure 5.13: Distribution des valeurs du module d'Young E_x à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

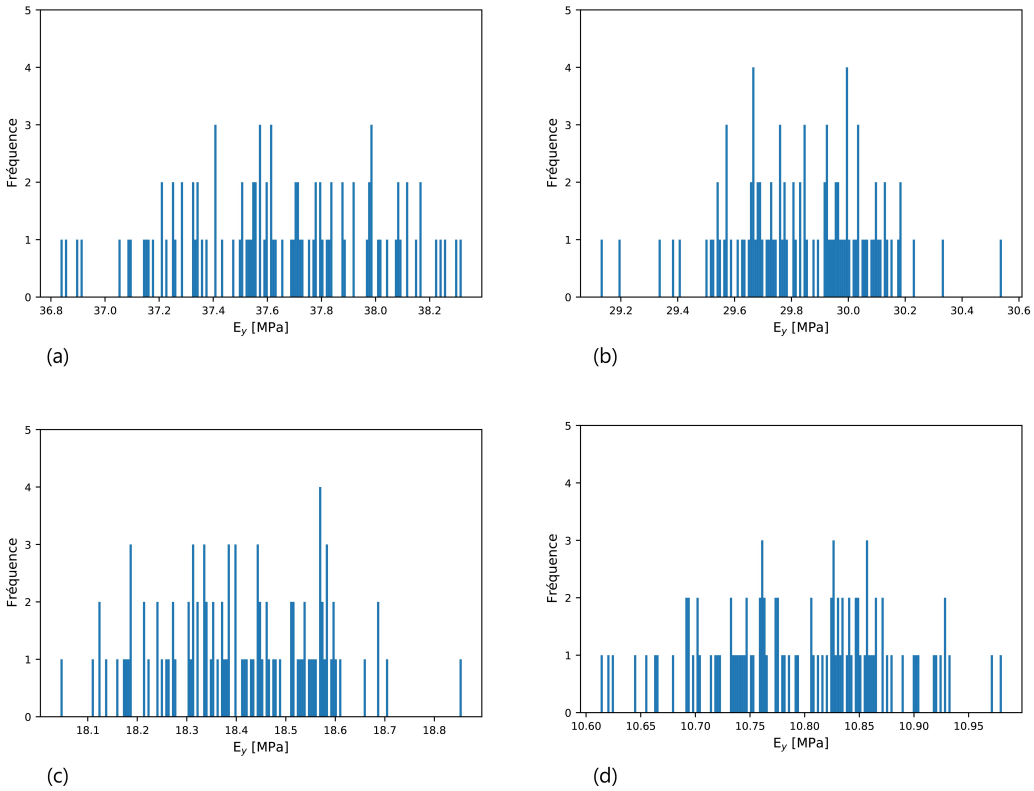


Figure 5.14: Distribution des valeurs du module d'Young E_y à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

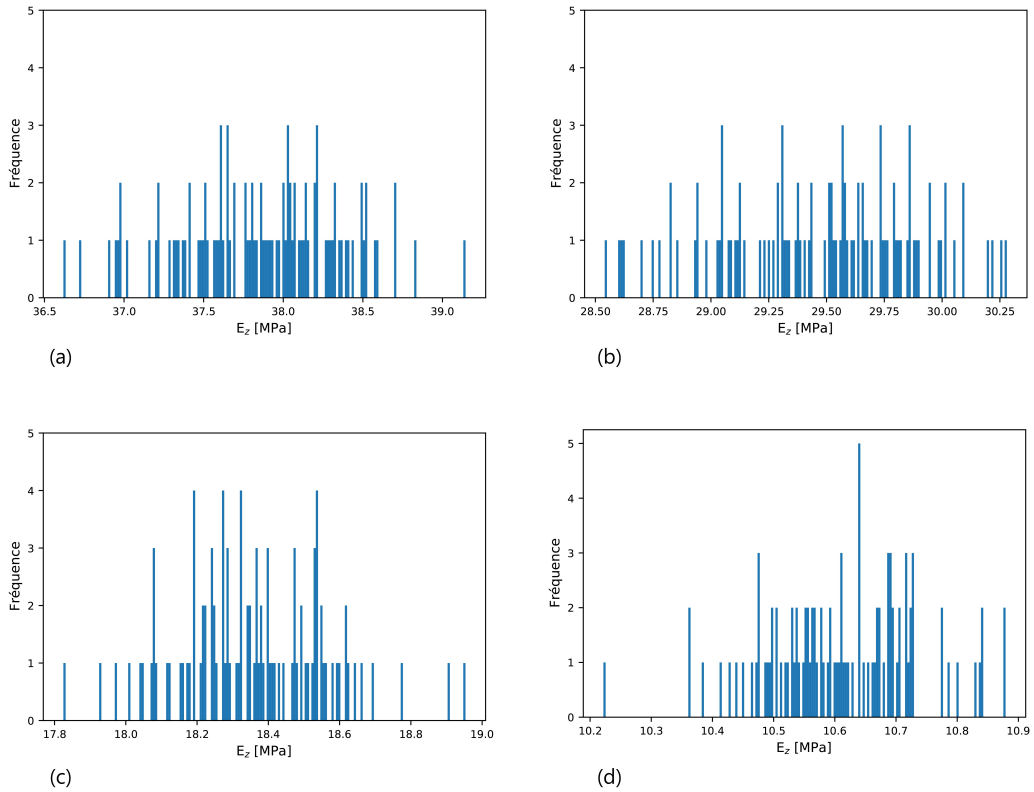


Figure 5.15: Distribution des valeurs du module d'Young E_z à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

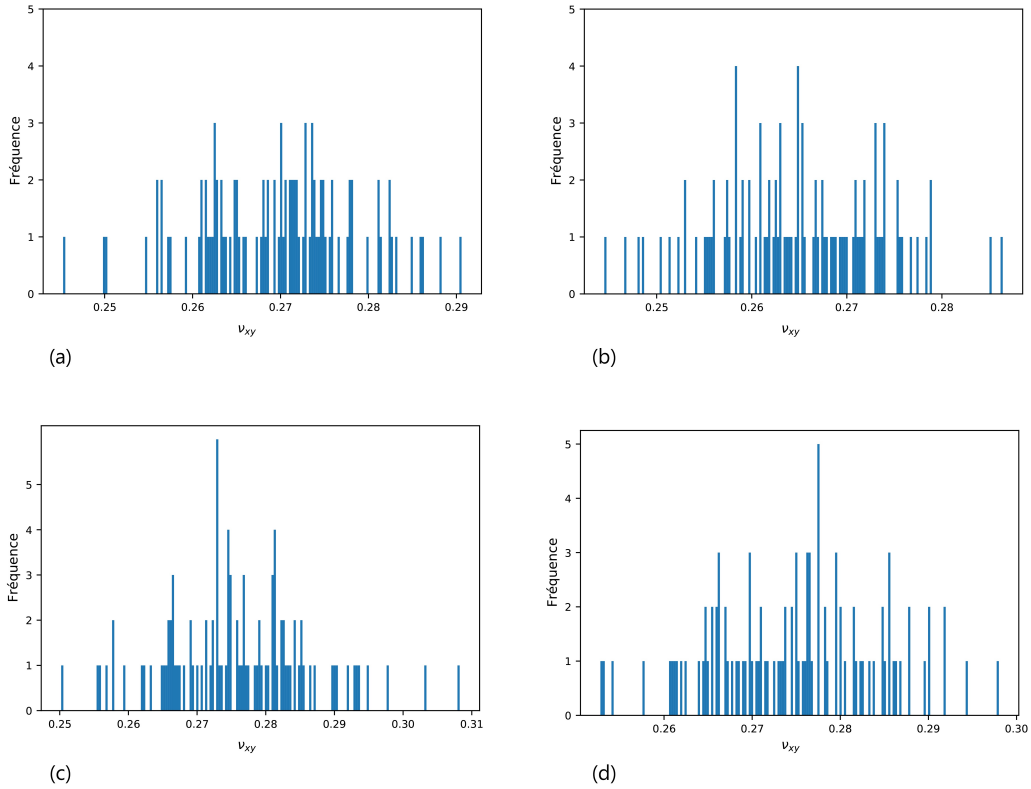


Figure 5.16: Distribution des valeurs du coefficient de Poisson ν_{xy} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

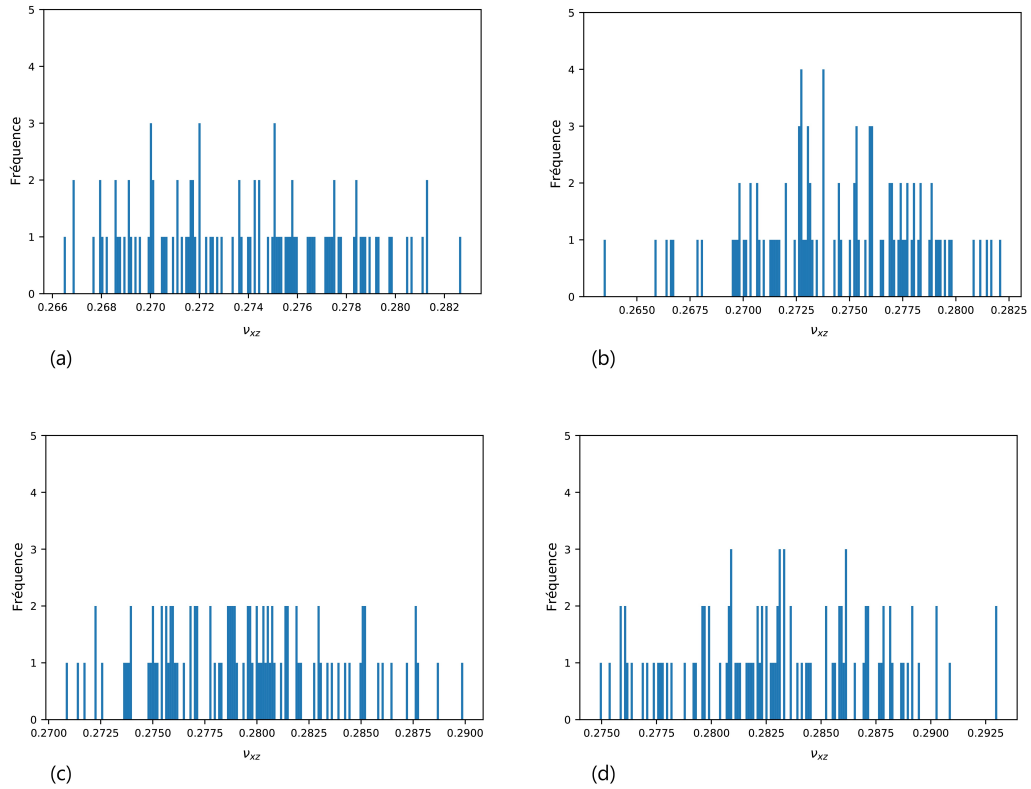


Figure 5.17: Distribution des valeurs du coefficient de Poisson ν_{xz} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

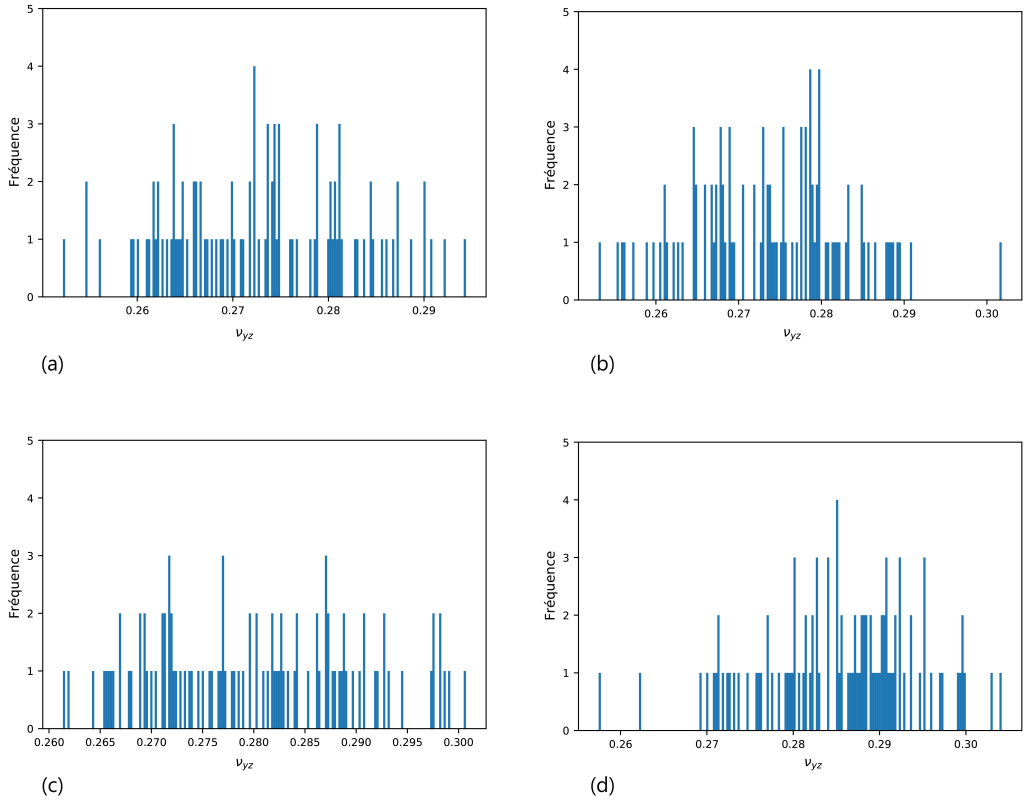


Figure 5.18: Distribution des valeurs du coefficient de Poisson ν_{yz} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

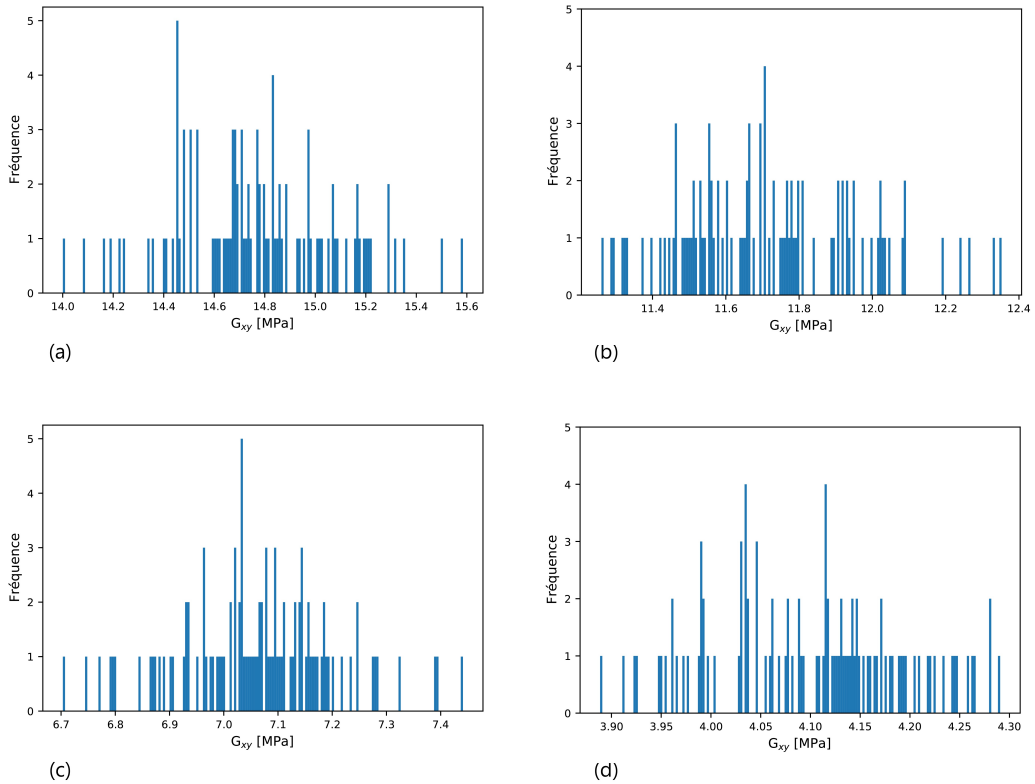


Figure 5.19: Distribution des valeurs du module de cisaillement G_{xy} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

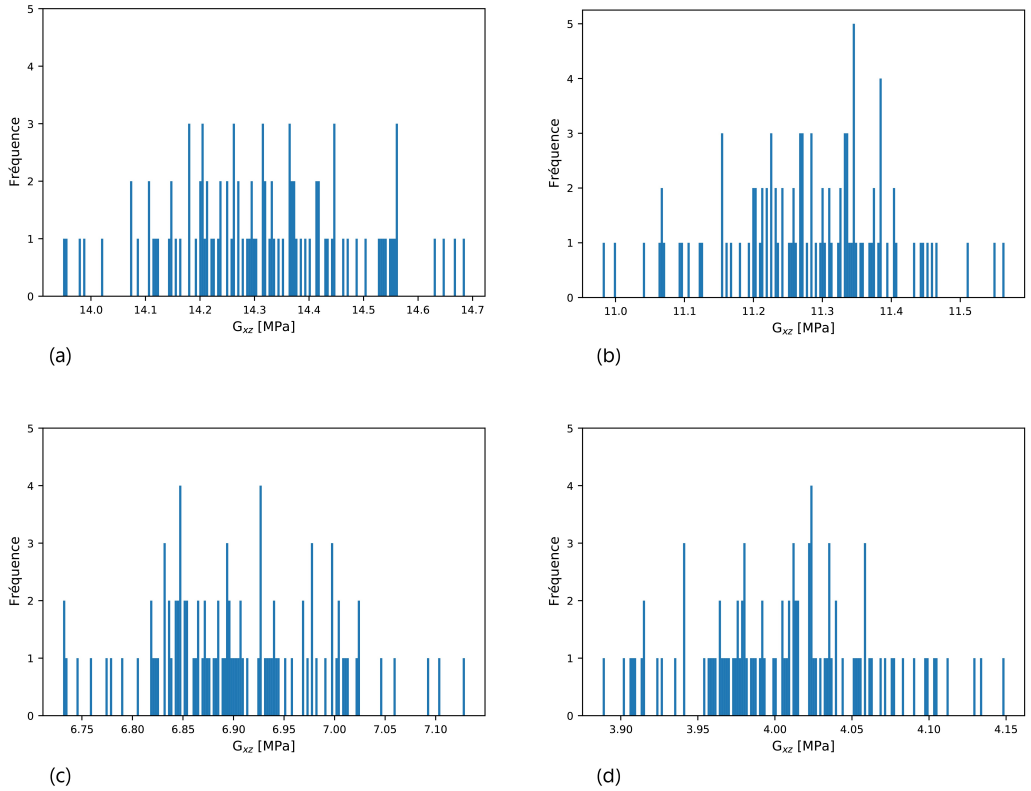


Figure 5.20: Distribution des valeurs du module de cisaillement G_{xz} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

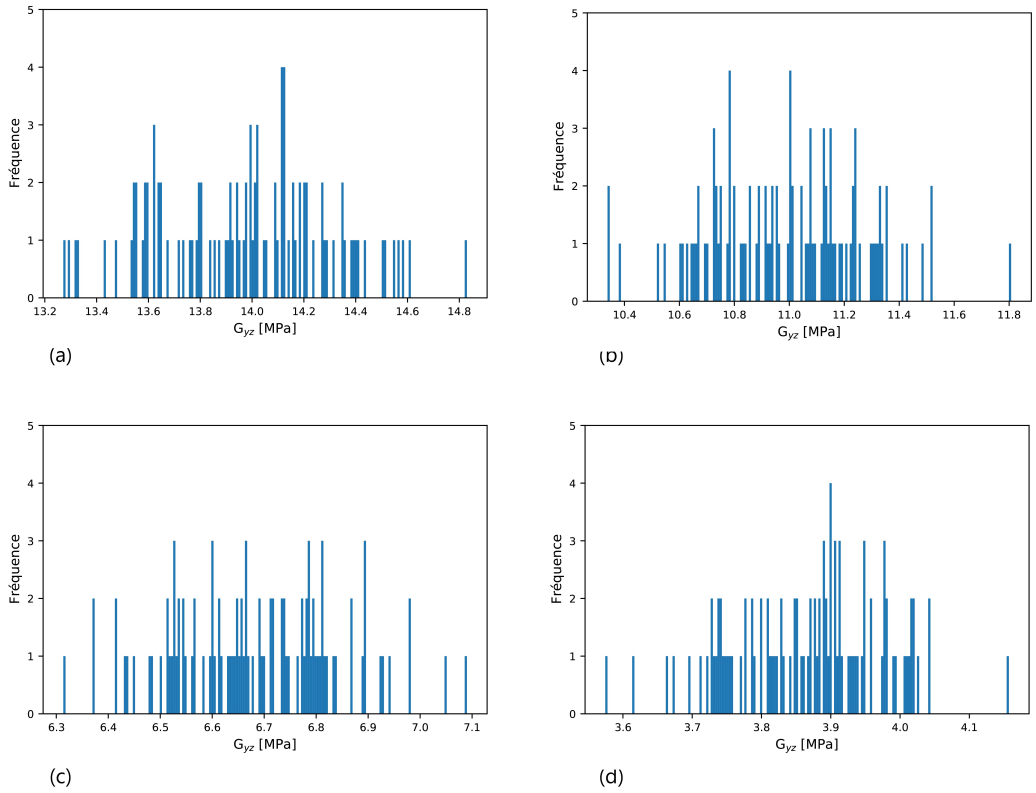


Figure 5.21: Distribution des valeurs du module de cisaillement G_{yz} à 25°C (a), 100°C (b), 200°C (c) et 300°C (d) pour le cas 3D.

Activité de diffusion

Articles de recherche publiés dans des revues internationales

- **M. Delucia**, A. Catapano, M. Montemurro, et J. Pailhès. Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates. *Journal of Reinforced Plastics and Composites.* 38(16): 760-776, 2019. https://doi.org/10.1177/0731684419846991
- **M. Delucia**, A. Catapano, M. Montemurro, et J. Pailhès. A stochastic approach for predicting the temperature-dependent elastic properties of cork-based composites. *Mechanics of Materials*, 145, 2020. https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2020.103399
- **M. Delucia**, A. Catapano, M. Montemurro, et J. Pailhès. Pre-stress state in cork agglomerates: simulation of the compression moulding process. *International Journal of Material Forming*, 14, 485–498, 2021. https://doi.org/10.1007/s12289-021-01623-x

Présentations dans des conférences internationales

- **M. Delucia**, A. Catapano, M. Montemurro, et J. Pailhès. Computational homogenisation for thermo-mechanical properties of cork-based composites. *First International Conference on Mechanics of Advanced Materials and Structures (ICMAMS 2018)*, Turin, Italie, Juin 2018.
- **M. Delucia**, A. Catapano, M. Montemurro, et J. Pailhès. Development of a modified Voronoi's tesselation algorithm for the determination of the effective properties of cork-based composites. *Eccomas Thematic Conference - Computational methods in multi-scale, multi-uncertainty and multi-physics problems (CM4P 2019)*, Porto, Portugal, Juillet 2019.

Présentations dans des conférences nationales

- **M. Delucia**, A. Catapano, M. Montemurro, et J. Pailhès. *Homogénéisation thermo-mécanique des composites à base de liège: variabilité des propriétés matériaux et propagation des incertitudes. 21ème Journées Nationales sur les Composites (JNC 21) de l'Association pour les MAtériaux Composites (AMAC)*, Bordeaux, France, Juillet 2019.

Bibliographie

[1] L. J. Gibson, K. E. Easterling, and M. F. Ashby. The Structure and Mechanics of Cork. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 377(1769):99–117, 1981.

[2] M. E. Rosa and M. A. Fortes. Rate effects on the compression and recovery of dimensions of cork. *Journal of Materials Science*, 23(3):879–885, 1988.

[3] M. A. Fortes and M. Teresa Nogueira. The Poisson effect in cork. volume A122, pages 272–232. 1989.

[4] F. Lopes and H. Pereira. Definition of quality classes for champagne cork stoppers in the high quality range. *Wood Science and Technology*, 34:3–10, 2000.

[5] H. Pereira. *Cork: Biology, Production and Uses*. Elsevier, 2007.

[6] J. F. Mano. Creep-recovery behaviour of cork. *Materials Letters*, 61(11-12):2473–2477, 2007.

[7] O. Anjos, H. Pereira, and M. E. Rosa. Effect of quality, porosity and density on the compression properties of cork. *Holz als Roh - und Werkstoff*, 66(4):295–301, 2008.

[8] O. Anjos, H. Pereira, and M. E. Rosa. Tensile properties of cork in the tangential direction: Variation with quality, porosity, density and radial position in the cork plank. *Materials and Design*, 31(4):2085–2090, 2010.

[9] O. Anjos, H. Pereira, and M. E. Rosa. Characterization of radial bending properties of cork. *European Journal of Wood and Wood Products*, 69(4):557–563, 2011.

[10] O. Anjos, C. Rodrigues, J. Morais, and H. Pereira. Effect of density on the compression behaviour of cork. *Materials and Design*, 53:1089–1096, 2014.

[11] H. Pereira. The rationale behind cork properties: A review of structure and chemistry. *BioResources*, 10(3):1–23, 2015.

[12] L. Gil. New cork-based materials and applications. *Materials (Basel)*, 8(2):625–637, 2015.

[13] A. P. Duarte and J. C. Bordado. Cork – a renewable raw material: Forecast of industrial potential and development priorities. *Frontiers in Materials*, 2:2, 2015.

[14] L. Le Barbenchon. *Description multi-échelles du comportement mécanique d'un matériau cellulaire composite sous sollicitations sévères. Application aux agglomérés de liège pour l'aéronautique.* Theses, HESAM Université, November 2020.

[15] J. De Brito and R. Kurda. The past and future of sustainable concrete: A critical review and new strategies on cement-based materials. *Journal of Cleaner Production*, 281:123558, 2021.

[16] M. Silveira, L. Menali, M. da Gloria, R. Toledo Filho, and S. Ferreira. Use of alternative aggregate for lightweight concrete production. *Academic Journal of Civil Engineering*, 37(2):576–582, Jun. 2019.

[17] Ha S. K. and G. S. Springer. Nonlinear Elastic Properties of Organic Matrix Composites at Elevated Temperatures. *Journal of Engineering Materials and Technology*, 110(2):124–127, 04 1988.

[18] T. Gentieu, A. Catapano, J. Jumel, and J. Broughton. Computational modelling of particulate-reinforced materials up to high volume fractions: Linear elastic homogenisation. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part L: Journal of Materials: Design and Applications*, 233(6):1101–1116, 2017.

[19] R.T. Jardin, F.A.O. Fernandes, A.B. Pereira, and R.J. Alves de Sousa. Static and dynamic mechanical response of different cork agglomerates. *Materials and Design*, 68:121–126, 2015.

[20] R. A. S. Moreira, F. J. Q. De Melo, and J. F. Dias Rodrigues. Static and dynamic characterization of composition cork for sandwich beam cores. *Journal of Materials Science*, 45(12):3350–3366, 2010.

[21] O. Castro, J. M. Silva, T. Devezas, A. Silva, and L. Gil. Cork agglomerates as an ideal core material in lightweight structures. *Materials and Design*, 31(1):425–432, 2010.

[22] M. J. Teixeira, C. A. Fernandes, B. Saramago, M. E. Rosa, and C. J. Bordado. Influence of the wetting properties of polymeric adhesives on the mechanical behaviour of cork agglomerates. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 10(11):1111–1127, 1996.

[23] P. T. Santos, S. Pinto, P. A.A.P. Marques, A. B. Pereira, and R. J. Alves de Sousa. Agglomerated cork: A way to tailor its mechanical properties. *Composite Structures*, 178:277–287, 2017.

[24] T. Santos, J. Amaral, V. Costa, and V. Amaral. Thermal Conductivity of Agglomerate Cork. In *Materials Research Proceedings*, volume 3, pages 1–10. 2017.

[25] R.F. Evert and S.E. Eichhorn. *Esau's Plant Anatomy: Meristems, Cells, and Tissues of the Plant Body: Their Structure, Function, and Development.* 3rd ed. John Wiley & Sons, New York, 2006.

[26] A. J. C. Arteiro. State-of-the-art: Sandwich Structures Applications in Impact Situations, Research Initiation Scolarship Report. Technical report, Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, University of Porto, 2010.

[27] L. Gil. *Cortiça: produção, tecnologia e aplicação.* Lisbon, 1998.

[28] M. Fátima Vaz and M. A. Fortes. Friction properties of cork. *Journal of Materials Science*, 33:2087–2093, 1998.

[29] H. Medeiros. Boletim da Junta Nacional de Cortiça. pages 165–170. 1945.

[30] M. H. Lopes, A. S. Barros, C. Pascoal Neto, D. Rutledge, I. Delgadillo, and A. M. Gil. Variability of cork from portuguese quercus suber studied by solid-state (13)C-NMR and FTIR spectroscopies. *Biopolymers*, 62(5):268–277, 2001.

[31] H. Pereira. Variability of the chemical composition of cork. *BioResources*, 8(2):2246–2256, 2013.

[32] V. Oliveira, M. E. Rosa, and H. Pereira. Variability of the compression properties of cork. *Wood Science and Technology*, 48(5):937–948, 2014.

[33] M. Emília Rosa and M. A. Fortes. Temperature-induced alterations of the structure and mechanical properties of cork. *Materials Science and Engineering*, 100:69 – 78, 1988.

[34] L. Gil. Cork composites: A review. *Materials*, 2(3):776–789, 2009.

[35] S. Kim. A study on cork-based plastic composite material. Master's thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2011.

[36] U.S. Department of Energy. *Advanced composites materials and their manufacture technology assessment*, 2015.

[37] D. Alfonso, R. Alves de Sousa, R. Torcato, and L. Pires. *Incremental Forming as a Rapid Tooling Process*. Springer International Publishing, 2019.

[38] F. A. O. Fernandes, R. J. S. Pascoal, and R. J. Alves de Sousa. Modelling impact response of agglomerated cork. *Materials and Design*, 58:499–507, 2014.

[39] D. Daniel Sheu and L. Hei-Kuang. A proposed process for systematic innovation. *International Journal of Production Research*, 49(3):847–868, 2011.

[40] C. Menager, N. Guigo, X. Wu, L. Vincent, and N. Sbirrazzuoli. 'green' composites prepared from polyfurfuryl alcohol and cork residues: Thermal and mechanical properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 124:105473, 2019.

[41] J. C. Motte, J. Y. Delenne, C. Barron, É. Dubreucq, and C. Mayer-Laigle. Elastic properties of packing of granulated cork: Effect of particle size. *Industrial Crops and Products*, 99:126–134, 2017.

[42] K. Crouvisier-Urion, J.P. Bellat, R.D. Gougeon, and T. Karbowiak. Mechanical properties of agglomerated cork stoppers for sparkling wines: Influence of adhesive and cork particle size. *Composite Structures*, 203:789–796, 2018.

[43] Abaqus Dasault systemes Simulia. Abaqus 6.14 user's guide. *Abaqus 6.14 Analysis User's Guide*, 2014.

[44] B. A. De Albuquerque and C. De Almeida. Mechanical behaviour of complex structures under high speed impacts. Master's thesis, Instituto Superior Técnico de Lisboa, 2016.

[45] C. Sergi, S. Boria, F. Sarasini, P. Russo, L. Vitiello, E. Barbero, S. Sanchez-Saez, and J. Tirillò. Experimental and finite element analysis of the impact response of agglomerated cork and its intraply hybrid flax/basalt sandwich structures. *Composite Structures*, 272:114210, 2021.

[46] E. J. Barbero. *Finite element analysis of composite materials using abaqus™*. 2013.

[47] C. P. Gameiro, J. Cirne, G. Gary, V. Miranda, J. Pinho-Da-Cruz, and F. Teixeira-Dias. Numerical and experimental study of the dynamic behaviour of cork. *Design and Use of Light-Weight Materials*, II, 2005.

[48] M. Paulino, F. Teixeira-Dias, C. P. Gameiro, and J. Cirne. Hyperelastic and dynamical behaviour of cork and its performance in energy absorption devices and crashworthiness applications. *International Journal of Materials Engineering Innovation*, 1, 2009.

[49] C. P. Gameiro, J. Cirne, V. Miranda, J. Pinho-Da-Cruz, and F. Teixeira-Dias. Dynamic behaviour of cork and cork-filled aluminium tubes: Numerical simulation and innovative applications. volume 61, 2007.

[50] J. Hallquist. *LS-DYNA® theory manual*. 2006.

[51] A. Einstein. Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. *Annalen der Physik*, 322(8):549–560, 1905.

[52] T. A. A. Broadbent, A. Einstein, H. Hertz, H. L. Dryden, F. P. Murnaghan, and H. Bateman. Investigations on the Theory of the Brownian Movement. *The Mathematical Gazette*, 41(337):231, 1957.

[53] E. Guth. Theory of filler reinforcement. *Journal of Applied Physics*, 16(1):20–25, 1945.

[54] J. C. Halpin. Stiffness and Expansion Estimates for Oriented Short Fiber Composites. *Journal of Composite Materials*, 3(4):732–734, 1969.

[55] J. C. Halpin. Effects of Environmental Factors on Composite Materials. *Technical Report Afml-Tr-67-423*, 1969.

[56] E. H. Kerner. The elastic and Thermo-elastic properties of composite media. *Proceedings of the Physical Society. Section B*, 69(8):808–813, 1956.

[57] W. Voigt. Ueber die Beziehung zwischen den beiden Elasticitatsconstanten isotroper korper. *Annalen der Physik*, 274(12):573–587, 1889.

[58] A. Reuss. Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle . *ZAMM - Journal of Applied Mathematics and Mechanics / Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik*, 9(1):49–58, 1929.

[59] Z. Hashin and S. Shtrikman. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 11(2):127–140, 1963.

[60] J. D. Eshelby. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclution and related problems. *Proceedings of the Physical Society of London, Series A*, 241:376–396, 1957.

[61] T. Mori and K. Tanaka. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica*, 21(5):571–574, 1973.

[62] R. Hill. A self-consistent mechanics of composite materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 13(4):213–222, 1965.

[63] B. Budiansky. On the elastic moduli of some heterogeneous materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 13(4):223–227, 1965.

[64] G. Lielens, P. Pirotte, A. Couniot, F. Dupret, and R. Keunings. Prediction of thermo-mechanical properties for compression moulded composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 29(1-2):63–70, 1998.

[65] A. Bensoussan, J.-L. Lionis, and G. Papanicolaou. *Asymptotic analysis for periodic structures.* North-Holland, Amsterdam, 1978.

[66] E. Sanchez-Palencia. *Non-Homogeneous Media and Vibration Theory.* 1980.

[67] Toledano and H. Murakami. A high-order mixture model for periodic particulate composites. *International Journal of Solids and Structures*, 23, 1987.

[68] F. Devries, H. Dumontet, G. Duvaut, and F. Lene. Homogenization and damage for composite structures. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 27, 1989.

[69] S. J. Hollister and N. Kikuchi. A comparison of homogenization and standard mechanics analyses for periodic porous composites. *Computational Mechanics*, 10, 1992.

[70] J. Fish, Q. Yu, and K. Shek. Computational damage mechanics for composite materials based on mathematical homogenization. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 45, 1999.

[71] D. R. S. Talbot and J. R. Willis. Variational Principles for Inhomogeneous Nonlinear Media. *IMA Journal of Applied Mathematics*, 35(1):39–54, 07 1985.

[72] P. Ponte Castañeda. The effective mechanical properties of nonlinear isotropic composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 39(1):45–71, 1991.

[73] P. Ponte Castañeda. New variational principles in plasticity and their application to composite materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 40, 1992.

[74] M. Gologanu, J. B. Leblond, and J. Devaux. Approximate models for ductile metals containing non-spherical voids-case of axisymmetric prolate ellipsoidal cavities. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 41, 1993.

[75] M. Kailasam and P. Ponte Castañeda. A general constitutive theory for linear and nonlinear particulate media with microstructure evolution. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46, 1998.

[76] P. Ponte Castañeda. Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations: I - theory. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 50, 2002.

[77] M. I. Idiart and P. Ponte Castañeda. Field statistics in nonlinear composites. i. theory. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 463, 2007.

[78] J. Fish, K. Shek, M. Pandheeradi, and M. S. Shephard. Computational plasticity for composite structures based on mathematical homogenization: Theory and practice. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 148, 1997.

[79] J. Fish and R. Fan. Mathematical homogenization of nonperiodic heterogeneous media subjected to large deformation transient loading. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 76, 2008.

[80] X. Markenscoff and C. Dascalu. Asymptotic homogenization analysis for damage amplification due to singular interaction of micro-cracks. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 60, 2012.

[81] J. Fish, Z. Yang, and Z. Yuan. A second-order reduced asymptotic homogenization approach for nonlinear periodic heterogeneous materials. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 119, 2019.

[82] J. C. Michel and P. Suquet. Nonuniform transformation field analysis. *International Journal of Solids and Structures*, 40(25):6937–6955, 2003. Special issue in Honor of George J. Dvorak.

[83] G. J. Dvorak. Transformation field analysis of inelastic composite materials. *Proceedings: Mathematical and Physical Sciences*, 437(1900):311–327, 1992.

[84] E. J. Barbero. *Finite element analysis of composite materials using ansys*. CRC Press, 2013.

[85] A. Catapano and M. Montemurro. A multi-scale approach for the optimum design of sandwich plates with honeycomb core. Part I: Homogenisation of core properties. *Composite Structures*, 118(1):664–676, 2014.

[86] A. Catapano and J. Jumel. A numerical approach for determining the effective elastic symmetries of particulate-polymer composites. *Composites Part B: Engineering*, 78:227–243, 2015.

[87] L. Cappelli, M. Montemurro, F. Dau, and L. Guillaumat. Characterisation of composite elastic properties by means of a multi-scale two-level inverse approach. *Composite Structures*, 204:767–777, 2018.

[88] G. Bertolino, M. Montemurro, and G. De Pasquale. Multi-scale shape optimisation of lattice structures: an evolutionary-based approach. *International Journal on Interactive Design and Manufacturing*, 13:1565–1578, 2019.

[89] K. Refai, M. Montemurro, C. Brugger, and N. Santier. Determination of the effective elastic properties of titanium lattice structures. *Mechanics of Advanced Materials and Structures*, 2019.

[90] L. Cappelli, G. Balokas, M. Montemurro, F. Dau, and L. Guillaumat. Multi-scale identification of the elastic properties variability for composite materials through a hybrid optimisation strategy. *Composites Part B: Engineering*, 176:107–193, 2019.

[91] L. Cappelli, M. Montemurro, F. Dau, and L. Guillaumat. Multi-scale identification of the viscoelastic behaviour of composite materials through a non-destructive test. *Mechanics of Materials*, 137:103–137, 2019.

[92] E. Ghossein and M. Lévesque. A fully automated numerical tool for a comprehensive validation of homogenization models and its application to spherical particles reinforced composites. *International Journal of Solids and Structures*, 49(11):1387–1398, 2012.

[93] J. Vondřejc, J. Zeman, and I. Marek. An fft-based galerkin method for homogenization of periodic media. *Computers and Mathematics with Applications*, 68(3):156–173, 2014.

[94] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, and D. Jeulin. Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. *International Journal of Solids and Structures*, 40(13):3647–3679, 2003.

[95] C. C. Chamis. Simplified composite micromechanics for predicting microstresses. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 6, 1987.

[96] M. Zou, B. Yu, and D. Zhang. An analytical solution for transverse thermal conductivities of unidirectional fibre composites with thermal barrier. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 35, 2002.

[97] Mingqing Zou, Boming Yu, Duanming Zhang, and Yongting Ma. Analysis of transverse thermal conductivities of unidirectional composites. volume 1, 2003.

[98] H. Hatta and M. Taya. Effective thermal conductivity of a misoriented short fiber composite. *Journal of Applied Physics*, 58, 1985.

[99] C. W. Nan, R. Birringer, D. R. Clarke, and H. Gleiter. Effective thermal conductivity of particulate composites with interfacial thermal resistance. *J. Appl. Phys.*, 81(10):6692–6699, 1997.

[100] C. W. Nan, Z. Shi, and Y. Lin. A simple model for thermal conductivity of carbon nanotube-based composites. *Chemical Physics Letters*, 375, 2003.

[101] R. Islam and A. Pramila. Thermal conductivity of fiber reinforced composites by the fem. *Journal of Composite Materials*, 33, 1999.

[102] A. K. Noor and R. S. Shah. Effective thermoelastic and thermal properties of unidirectional fiber-reinforced composites and their sensitivity coefficients. *Composite Structures*, 26, 1993.

[103] P. S. Turner. Thermal-expansion stresses in reinforced plastics. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 37(4):239, 1946.

[104] R. Levin and V. M. Hill. Thermal expansion coefficients of heterogeneous materials. *CrossRef Festkörper. Int. J. Engng. Sci*, 11, 1967.

[105] B. W. Rosen and Z. Hashin. Effective thermal expansion coefficients and specific heats of composite materials. *International Journal of Engineering Science*, 8(2):157–173, 1970.

[106] R. A. Schapery. Thermal Expansion Coefficients of Composite Materials Based on Energy Principles. *Journal of Composite Materials*, 2(3):380–404, 1968.

[107] B. Budiansky. Thermal and thermoelastic properties of isotropic composites. *Journal of Composite Materials*, 4, 1970.

[108] N. J. Chamberlain. Derivation of Expansion Coefficients for a Fibre Reinforced Composites. Technical report, British Aircraft Corporation, London, 1968.

[109] D. E. Bowles and S. S. Tompkins. Prediction of Coefficients of Thermal Expansion for Unidirectional Composites. *Journal of Composite Materials*, 1989.

[110] M. Ashby, E. Cope, and D. Cebon. Materials Selection for Engineering Design. In *Informatics for Materials Science and Engineering*, pages 219–244. 2013.

[111] M. Delucia, A. Catapano, M. Montemurro, and J. Pailhès. Determination of the effective thermoelastic properties of cork-based agglomerates. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 38(16):760–776, 2019.

[112] T. Gentieu, A. Catapano, J. Jumel, and J. Broughton. A mean-field homogenisation scheme with czm-based interfaces describing progressive inclusions debonding. *Composite Structures*, 229:111398, 2019.

[113] D. Zeka, A. Catapano, P.M. Mariano, M. Montemurro, R. Poupart, O. Mondain-Monval, J. Delcroix, and P. Rublon. Non-linear homogenization of polymer composites with porous inclusions. *Mechanics of Materials*, 168:104276, 2022.

[114] P. Ponte Castañeda. Exact second-order estimates for the effective mechanical properties of nonlinear composite materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44(6):827–862, 1996.

Marco DELUCIA

Développement de modèles multi-échelle et multi-physiques pour la conception de composites à base de liège

RÉSUMÉ

Cette thèse porte sur le développement de modèles multi-échelle et multi-physiques de l'aggloméré de liège dans le but de développer une première contribution à la compréhension du comportement des composites à base de liège. Ce travail contribue au développement de nouvelles méthodes de conception basées sur des approches systématiques. Le travail de thèse est focalisé sur les agglomérés blancs. Un premier modèle numérique 2D de l'agglomère à l'échelle mésoscopique a été développé afin de comprendre le comportement thermomécanique local des granules de liège. Ceci a permis d'étudier l'influence de certains paramètres de conception sur les propriétés thermoélastiques de l'aggloméré à l'échelle macroscopique. À la suite de ce premier travail, le modèle numérique 2D de l'aggloméré a été généralisé et un nouveau modèle numérique 3D a été développé. Une stratégie d'homogénéisation, basée sur une approche stochastique, a été développée afin d'étudier l'influence de la variabilité des propriétés élastiques du liège naturel sur les propriétés élastiques de l'aggloméré en fonction de la température. Les résultats obtenus grâce à ces travaux peuvent être utiles dans une logique d'aide à la décision pour la conception de l'aggloméré par la méthode essai/erreur. Enfin, l'état de pré-contrainte au sein de l'aggloméré fabriqué par moulage par compression a été évalué à travers la simulation du processus de compression. L'approche proposée est basée sur une simulation de la phase de remplissage du moule suivie d'une phase de compression. Les courbes contrainte-déformation du granulé, dépendants du temps et à différents états de déformation, représentent un premier résultat utile comme donnée d'entrée dans une démarche de conception qui tient compte des effets du procédé de fabrication.

Mots clés : Composites à base de liège, homogénéisation, méthode aux éléments finis, propriétés élastiques, propriétés thermiques, variabilité, algorithme de Monte Carlo, moulage par compression, état de pré-contrainte

ABSTRACT

This thesis focuses on the development of multi-scale and multi-physical models of the cork agglomerate with the aim of developing a first contribution to characterise the behaviour of cork-based composites. This work contributes to the development of new design methods based on systematic approaches. The thesis's work is focused on white agglomerates. A first 2D numerical model of the agglomerate at the mesoscopic scale has been developed in order to understand the local thermomechanical behaviour of cork granules. This made it possible to study the influence of some design parameters on the thermoelastic properties of the agglomerate at the macroscopic scale. Following this first work, the 2D numerical model of the agglomerate has been generalised and a new 3D numerical model has been proposed. A homogensation strategy, based on a stochastic approach, has been introduced to study the influence of the variability of the elastic properties of natural cork on the elastic properties of the agglomerate as a function of temperature. The results obtained thanks to these works can be useful for the design of the agglomerate by the trial/error method. Finally, the pre-stress state into the agglomerate, made by the compression moulding, has been evaluated by means of the simulation of the compression process. The proposed approach is based on a simulation of the mould filling phase followed by a compression phase. The time dependent stress-strain curves of the granulate, at different strain states, represent a first useful result as input data in a design approach that takes into account the effects of manufacturing process.

Keywords : Cork-based composites, homogenisation, finite element method, elastic properties, thermal properties, variability, Monte Carlo algorithm, compression moulding, pre-stress state