

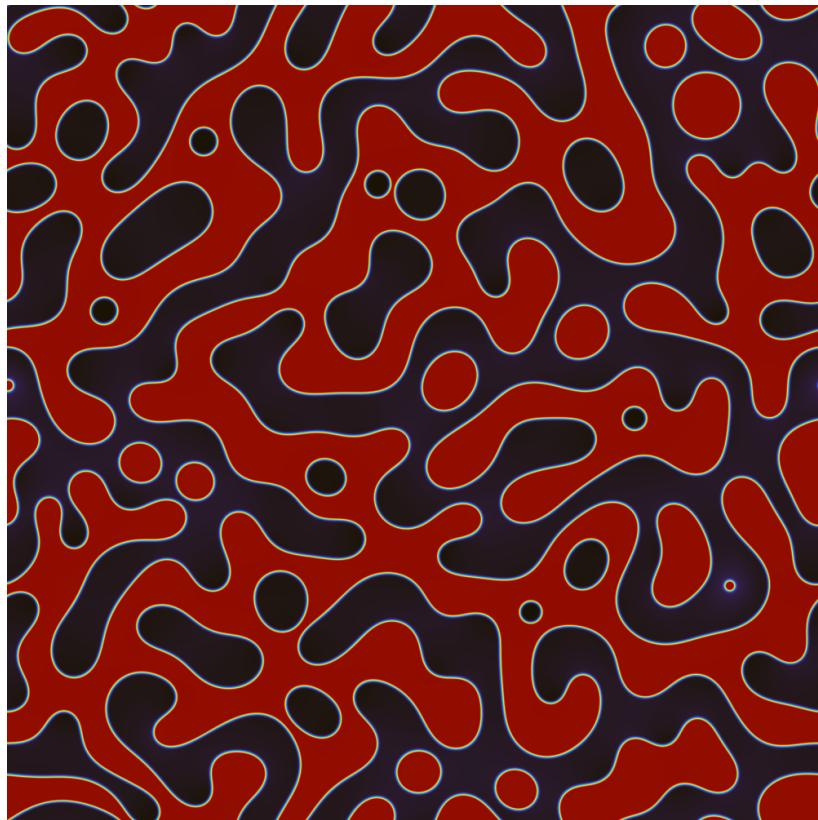
Rapport LINMA2720 – L'équation de Cahn-Hilliard avec une mobilité variable : application d'une méthode spectrale

Pierre Veldeman
2198 16 00

Gilles Poncelet
1063 16 00

Résumé

L'équation de Cahn-Hilliard permet de modéliser une grande variété de phénomènes intéressants. Sa complexité inhérente fait que de nombreuses études ont été menées à son sujet, et particulièrement sur sa résolution numérique. Dans ce travail, nous analysons les origines mathématiques du modèle proposé par Cahn & Hilliard en 1958. Ensuite, nous nous intéressons à sa résolution numérique à l'aide d'une méthode spectrale afin de garantir la plus haute précision possible. Les temps de simulation sont gardés raisonnables grâce à l'usage de méthodes d'intégration temporelle semi-implicites (schémas IMEX) ou de différenciation exponentielle temporelle (schémas ETD). Ceci permet d'étudier l'impact sur le long terme des différents modes de diffusion dans l'évolution morphologique de l'équation de Cahn-Hilliard. Nous arrivons à redémontrer des résultats connus de la littérature scientifique en utilisant notre propre implémentation haute performance sur GPU.



I. INTRODUCTION

L'équation de Cahn-Hilliard, initialement développée dans le but de modéliser la dynamique de séparation des phases dans un alliage binaire, a été subséquemment utilisée pour modéliser une grande variété de phénomènes [1] (et autres références s'y trouvant), de l'évolution de tumeurs à la modélisation de copolymères de Diblock en passant par l'étude de fluides à deux phases en couplant l'équation de Cahn-Hilliard aux équations de Navier-Stokes. Dès lors, il n'est pas surprenant d'observer que de nombreux papiers scientifiques se concentrent sur l'étude de cette équation.

Plus spécifiquement, nous allons nous concentrer sur l'article de J. Zhu, L.-Q. Chen, J. Shen et V. Tikar [2] qui traite de l'équation de Cahn-Hilliard et de sa résolution numérique. Cet article se concentre sur la modélisation de la dynamique de séparation de phases et en particulier celle qui a lieu lors de la trempe de certains alliages (par exemple, Al-22%Zn, SiO-12.6%Na₂O, Al-20%Ag [3]). Avant la trempe, un alliage de ce type est initialement à haute température et constitué d'une seule phase en équilibre thermodynamique. La trempe de celui-ci fait brusquement chuter sa température, rendant la première phase instable. Apparaissent alors deux phases qui vont se séparer au cours du temps au cours d'un processus appelé décomposition spinodale. L'étude de cette séparation est motivée par le fait que les propriétés macroscopiques de l'alliage dépendent de sa structure, elle-même dépendante de ce processus. Mieux comprendre la décomposition spinodale permet donc de mieux maîtriser les propriétés macroscopiques du matériau.

L'article sur lequel nous nous basons considère l'équation de Cahn-Hilliard proposée en 1958, avec un puits de potentiel polynomial. Depuis lors, les chercheurs ont par exemple couplé cette équation aux équations de Navier-Stokes [4], ont étudié d'autres formes de puits de potentiel [5], ou ont étendu l'équation à l'étude d'un milieu composé de plus de deux phases [6].

Au niveau de la résolution de l'équation de Cahn-Hilliard, le papier de référence utilise une méthode spectrale avec conditions frontières périodiques. D'autres méthodes ont été envisagées dans le monde scientifique, comme les éléments finis (Wells *et al.* [7] établissent un état de l'art pour cette famille de méthodes) et les différences finies (voir par exemple [8]–[10]). Finalement, [11] mentionne également l'existence de méthodes spectrales aux conditions frontières non périodiques.

La section II de ce rapport introduit l'équation de Cahn-Hilliard avec une mobilité constante ou variable, ainsi qu'une extension stochastique de celle-ci, permettant de prendre en compte l'agitation thermique. La section III traite de la résolution numérique de l'équation de Cahn-Hilliard développée dans [2] ainsi qu'une extension à des schémas d'ordre supérieur. Dans la section IV, nous reproduisons les résultats de [2] à l'aide de notre propre implémentation. Ces résultats portent sur les performances de la méthode et sur les propriétés « physiques » des solutions numériques (longueur caractéristique du domaine, facteur de structure). Finalement, la section V présentera notre évaluation du papier de référence [2] et une conclusion sera donnée à la section VI.

II. L'ÉQUATION DE CAHN-HILLIARD

L'équation de Cahn-Hilliard (CH) est un modèle mathématique, proposé en 1958 par John W. Cahn et John E. Hilliard [12] afin de décrire l'évolution d'un système isostructural composé de deux phases¹ α (d'espèce chimique A) et β (d'espèce chimique B) entre lesquelles il n'y a pas d'échange. CH se concentre donc sur la séparation de phases et non sur la transition de phases. Ce système évolue sur un domaine Ω pour un temps $t \in [0, T]$. Dans ce rapport, nous considérerons $\Omega = [0, \omega]^2$ mais l'équation de Cahn-Hilliard peut être définie pour d'autres domaines ou d'autres dimensions. Les premiers résultats théoriques s'inscriront dans ce cadre général et Ω ainsi que les éléments qui s'y rapportent seront alors associés à un « volume » et sa frontière à une « surface ».

Comme il n'y a que deux phases dans le système, il peut être décrit par une unique fonction²

$$\begin{aligned} c : \Omega \times [0; T] &\rightarrow [-1, 1] \\ (\mathbf{r}, t) &\mapsto c(\mathbf{r}, t) \end{aligned}$$

témoin de la composition du système. En un point $(\mathbf{r}, t) \in \Omega \times [0; T]$, $c(\mathbf{r}, t) = 1$ indique que seule la phase α y est présente et $c(\mathbf{r}, t) = -1$ signifie que la phase β domine. Une valeur intermédiaire signifie que le point se trouve dans l'interface entre les deux phases. Ce changement entre les deux phases se fait continuellement. En dehors de cette interface, les phases sont supposées à l'équilibre thermodynamique.

L'hypothèse selon laquelle il n'y a pas d'échange entre les deux phases (avec des conditions frontières adéquates) implique que l'intégrale $C(t) := \int_{\Omega} d\Omega c(\mathbf{r}, t)$ est conservée au cours du temps, autrement dit, $\frac{dc}{dt} = 0 \quad \forall t \in [0, T]$.

En supposant que l'énergie thermique $k_B T$ est négligeable par rapport au reste des processus, il est possible d'utiliser la loi de Fick afin de décrire le flux d'atomes comme proportionnel au gradient de potentiel chimique [14] :

$$J = -N_V M \nabla \mu \tag{1}$$

où N_V est le nombre d'atomes par unité de volume, M est la mobilité atomique (considérée constante dans un premier temps ; un développement plus général sera effectué plus tard) et $\mu(\mathbf{r}, t) = \mu_B(\mathbf{r}, t) - \mu_A(\mathbf{r}, t)$ est la différence de potentiel chimique entre les deux espèces. L'équation de Cahn-Hilliard s'obtient dès lors en appliquant l'équation de continuité à (1) :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = N_V \nabla \cdot (M \nabla \mu) \tag{2}$$

qui est essentiellement une équation de diffusion du potentiel chimique.

Afin de garantir la conservation de $C(t)$ au cours du temps, il est alors suffisant (mais pas nécessaire), par le théorème de la divergence, d'imposer comme condition frontière $J(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r}) = 0 \quad \forall \mathbf{r} \in \partial\Omega, t \in [0, T]$, avec $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ la direction normale à la frontière en un point $\mathbf{r} \in \partial\Omega$.

1. Une phase est définie dans [13] comme étant « A specific physical state of matter. A substance may exist in solid, liquid, and gaseous phases and, in certain cases, in more than one solid or liquid phase. » Il ne faut néanmoins pas confondre état de la matière et phase. En effet, un mélange deux liquides non miscibles (eau et huile par exemple) est d'un seul état (liquide) mais de deux phases.

2. Ceci est en réalité une hypothèse, qui sous-entend que par exemple, les champs de température et de pression sont constants. Ceci est important pour la suite, notamment lors du calcul des potentiels chimiques.

Il est également possible d'imposer des conditions périodiques sur la frontière, comme il sera fait plus tard dans ce rapport. Dans le cadre d'un domaine carré, cela reviendrait au niveau des conditions frontières à travailler (de manière imagée) sur un tore et il n'y aurait alors plus de frontière.

A. Modèle constitutif du potentiel chimique

En thermodynamique, le potentiel chimique est défini comme la dérivée partielle de l'énergie libre totale F par rapport à la quantité de moles d'un corps à volume et température constants. Le potentiel chimique local peut dès lors être défini comme étant la dérivée fonctionnelle de l'énergie libre par rapport à c :

$$N_V \mu = \frac{\delta F}{\delta c} \quad (3)$$

$$= \frac{\delta}{\delta c} \int_{\Omega} f \, d\Omega \quad (4)$$

$$= \frac{\partial f}{\partial c} - \nabla \cdot \frac{\partial f}{\partial \nabla c} \quad (5)$$

où $f = f(c, \nabla c)$ est l'énergie libre locale par molécule. Cahn et Hilliard [12] dérivent un modèle mathématique pour modéliser l'énergie libre interfaciale entre deux phases. Pour ce faire, ils tentent d'exprimer f comme étant la somme de deux contributions : une fonction de la composition locale $c(\mathbf{r}, t)$ et une autre fonction des dérivées de $c(\mathbf{r}, t)$. En supposant que f est une fonction continue de ces variables et en restreignant leur analyse aux systèmes cristallins cubiques et milieux isotropes, ils obtiennent le développement en série de Taylor autour de f_0 , l'énergie libre par molécule d'une solution de composition uniforme c :

$$f(c, \nabla c, \nabla^2 c, \dots) = f_0(c) + \kappa_1 \nabla^2 c + \kappa_2 (\nabla c)^2 + \dots \quad (6)$$

où $\kappa_1 = \partial f / \partial \nabla^2 c$ et $\kappa_2 = \partial^2 f / (\partial |\nabla c|)^2$ évalués dans une solution de composition uniforme. L'énergie libre totale s'obtient en intégrant f sur le domaine Ω :

$$F = N_V \int_{\Omega} [f_0(c) + \kappa_1 \nabla^2 c + \kappa_2 (\nabla c)^2 + \dots] \, d\Omega \quad (7)$$

L'application du théorème de la divergence donne :

$$\int_{\Omega} \kappa_1 \nabla^2 c \, d\Omega = - \int_{\Omega} \frac{\partial \kappa_1}{\partial c} (\nabla c)^2 \, d\Omega + \int_{\partial \Omega} \kappa_1 \nabla c \cdot \mathbf{n} \, d(\partial \Omega) \quad (8)$$

Comme les effets sur la surface extérieure ne sont pas intéressants ici, il est possible de choisir une surface d'intégration telle que $\nabla c \cdot \mathbf{n} = 0$. Dès lors, l'intégrale de surface disparaît et (7) peut être simplifiée en :

$$F = N_V \int_{\Omega} \left[\underbrace{f_0(c) + \frac{1}{2} \kappa (\nabla c)^2 + \dots}_{=f(c, \nabla c)} \right] \, d\Omega \quad (9)$$

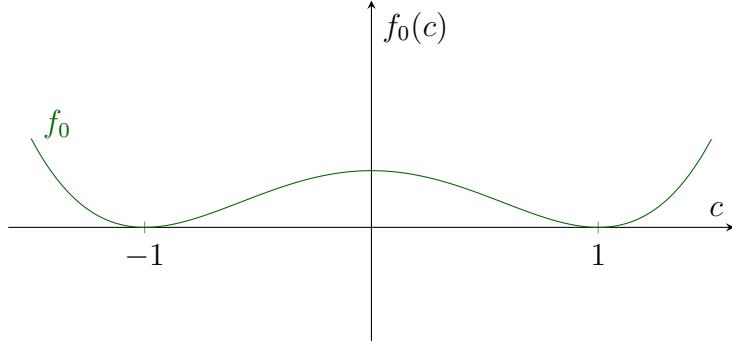


FIGURE 1: Double puits de potentiel. Son domaine peut être restreint à $[-1, 1]$, étant donné que c ne peut pas sortir de cet intervalle. Il a néanmoins été tracé sur un intervalle plus large pour mieux visualiser ce double puits.

avec $\kappa = 2(-\partial\kappa_1/\partial c + \kappa_2)$, le *coeffcient d'énergie de gradient*³. L'équation (9) restreinte au premier ordre constitue le modèle d'énergie libre d'interface développé par Cahn et Hilliard en 1958 et montre qu'il est possible d'exprimer une approximation de l'énergie libre comme étant la somme de l'énergie libre que ce volume aurait dans une solution homogène et d'une *énergie de gradient* qui est une fonction de la composition locale.

L'énergie libre par molécule d'une composition uniforme $f_0(c)$ est fréquemment modélisée par un double puits de potentiel dont les minima sont centrés en ± 1 , représenté à la FIGURE 1. Ces deux minima sont nécessaires pour assurer la séparation des deux phases. Il a comme expression analytique⁴ $f_0(c) = \frac{1}{4}(c^2 - 1)^2$ et sa dérivée vaut donc

$$f'_0(c) = c^3 - c. \quad (10)$$

Dès lors, étant donné l'hypothèse (9) sur f ,

$$\frac{\partial f}{\partial c} = f'_0(c) = c^3 - c \quad (11)$$

$$\frac{\partial f}{\partial \nabla c} = \kappa \nabla c \quad (12)$$

et l'équation (5) devient alors

$$N_V \mu = c^3 - c - \kappa \nabla^2 c. \quad (13)$$

Insérer le modèle (9) dans (2) permet de retrouver la forme classique en unités adimensionnelles de l'équation de Cahn-Hilliard avec mobilité constante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla^2 (c^3 - c - \kappa \nabla^2 c)$$

(14)

3. Cahn et Hilliard définissent $\kappa = -\partial\kappa_1/\partial c + \kappa_2$ mais, pour des raisons de simplification, l'équation de Cahn-Hilliard est généralement définie avec un facteur 2 en plus dans la définition de κ .

4. Il s'agit en fait d'une approximation polynomiale d'un modèle thermodynamique faisant apparaître un \log [15], couramment utilisée en pratique.

B. Équation stochastique

Comme le discute Cook [3], l'équation (14) perd de sa validité pour des concentrations initiales faibles où l'hypothèse que l'énergie thermique est négligeable et que le flux est donné par (1) n'est plus valide. Effectivement, à l'équilibre ($t \rightarrow \infty$), il en ressort que :

$$\nabla\mu = 0 \quad (15)$$

ce qui signifie que l'équilibre décrit par (14) est complètement statique et qu'il n'y a aucun mouvement d'atome. Or, il est connu que cet équilibre n'est pas statique et qu'il est possible d'observer des flux de soluté avec des arrangements d'atomes qui se font et défont continuellement. Cook établit une analogie stricte avec le mouvement Brownien et propose la modification suivante à l'expression du flux (1) :

$$J = -N_V M \nabla\mu + \xi(\mathbf{r}, t) \quad (16)$$

où $\xi(\mathbf{r}, t)$ est une contribution thermique aléatoire au flux total et possède les propriétés suivantes, comme définies par [16] :

$$\langle \xi(\mathbf{r}, t) \rangle = 0 \quad (17)$$

$$\langle \xi(\mathbf{r}, t) \xi(\mathbf{r}', t') \rangle = -2k_B T M \nabla^2 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t') \quad (18)$$

Ces propriétés expriment deux choses : le bruit additif est non-corrélé en temps, mais partiellement corrélé en espace et il n'y a pas de force de drift globale. L'amplitude du bruit est fixée par $k_B T$ et la mobilité M . De plus, l'opérateur ∇^2 dans (18) exprime la conservation du champ considéré : une force aléatoire qui s'applique sur la matière dans un site physique doit impérativement être contrebalancée par des forces s'appliquant sur des sites voisins.

De manière plus rigoureuse, il est possible de définir l'équation stochastique de Cahn-Hilliard suivante [17], [18] :

$$dc(t) = \mathcal{A}(t, c) dt + \mathcal{B}(t, c) dW(t) \quad (19)$$

où \mathcal{A} est défini comme étant le membre de droite de l'équation déterministe de Cahn-Hilliard (14), \mathcal{B} est un opérateur dont la modélisation complète sort du cadre de ce travail, et $W(t)$ un mouvement brownien cylindrique (voir [17]). Toutefois, le choix particulier $\mathcal{B} = 1$ mène à l'équation dite de Cahn-Hilliard-Cook définie précédemment.

C. Mobilité

La mobilité peut être définie comme suit, en tenant compte des mobilités atomiques de chaque espèce :

$$M(c) = c_1 c_2 (c_2 M_1 + c_1 M_2) \quad (20)$$

où $c_i \in [0, 1]$ et M_i représentent respectivement la concentration et la mobilité atomique de l'espèce i . Les concentrations sont liées par la relation $c_1 + c_2 = 1$, et il est possible de retomber sur une expression en c par un simple changement de variable. Ce modèle s'annule bien lorsqu'une des concentrations est maximale. De plus, lorsque $c_1 \rightarrow 1$, $M(c) \approx c_2 M_2$. Proche des concentrations maximales, la mobilité correspondra donc au produit de la concentration et de la mobilité de l'espèce la moins présente.

Les effets de diffusions dans la théorie de Cahn et Hilliard se passent principalement dans une interface fine entre les deux phases. Dès lors, le coefficient de mobilité M doit satisfaire un

critère adéquat afin de garantir la cohérence de l'équation de Cahn-Hilliard : $M = 0$ pour tous les points « éloignés » de cette interface où les effets de diffusions sont pratiquement absents (cette condition implique que $[-1, 1]$ est un invariant pour c). Deux formes discutées dans ce travail peuvent satisfaire cette contrainte et modéliser la mobilité (20) :

- M est constant si $|c| < 1$ et nul pour $c = \pm 1$;
- $M(c) = \mathcal{D}(1 - c^2)/2k_B T$ pour une constante \mathcal{D} quelconque.

Cahn et Taylor [19] commentent que le deuxième modèle se comporte de manière « acceptable » d'un point de vue thermodynamique pour des valeurs $c \approx \pm 1$, tout en restant simple. Un raisonnement plus exhaustif invoquant d'autres modèles d'interaction et d'énergie libre atomistique menant à cette cette conclusion est effectué par [20], mais sort du cadre de nos compétences et ne sera donc pas abordé dans ce travail.

Zhu *et al.* définissent la mobilité (adimensionnelle) avec un paramètre supplémentaire :

$$M(c) = 1 - ac^2 \quad (21)$$

Ce paramètre a permet de passer du modèle de mobilité constante ($a = 0$) couramment utilisé en pratique au modèle de mobilité variable proposé ci-dessus ($a = 1$). En pratique, ce paramètre permet de définir quel type de diffusion domine dans l'équation de Cahn-Hilliard : diffusion de volume ($a = 0$, mobilité constante) ou diffusion interfaciale ($a = 1$). En faisant varier ce paramètre, il est possible d'analyser le rôle des deux modes de diffusion dans la cinématique d'épaississement des phases. Morphologiquement, les résultats sont similaires dans les deux cas, mais différents en terme de « temps de diffusion » : c'est l'objectif de l'analyse menée dans la section IV.

Cette définition de la mobilité mène dès lors à l'équation de Cahn-Hilliard avec une mobilité variable :

$$\boxed{\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot [(1 - ac^2)\nabla(c^3 - c - \kappa\nabla^2 c)]} \quad (22)$$

D. Discussion

Le double puits de potentiel est une approximation polynomiale d'un modèle thermodynamique introduisant des log. Cette approximation devient grossière lorsque la trempe est trop forte [21].

L'introduction d'un terme stochastique dans l'équation de Cahn-Hilliard permet de prendre en compte les effets de l'agitation thermique. Si celle-ci n'est pas modélisée, la solution à l'équilibre est statique ($J|_{eq} \equiv 0$), ce qui ne correspond pas aux observations empiriques. Néanmoins, l'introduction de ce bruit reste controversée quant à son impact sur le comportement de la solution à long terme [16]. Il a notamment été prouvé que certaines caractéristiques centrales (qui seront détaillées dans la section IV) ne sont pas influencées par ce bruit thermique (pour des températures raisonnables), comme la longueur caractéristique du domaine $L(t)$ [22].

La suite de ce rapport traitera de la résolution numérique des équations déterministes de Cahn-Hilliard avec mobilité constante (14) et variable (22). La résolution numérique de l'équation stochastique de Cahn-Hilliard sort du cadre de ce travail. Toutefois, le lecteur intéressé est invité à lire [16] pour voir un exemple de résolution de l'équation stochastique de Cahn-Hilliard-Cook.

III. RÉSOLUTION NUMÉRIQUE

Dans ce papier, l'équation de Cahn-Hilliard est résolue sur un domaine carré et périodique. Afin d'obtenir une simulation numérique de haute qualité, il est nécessaire d'avoir un système suffisamment large que pour minimiser les effets de la périodisation du domaine ainsi que de pouvoir avancer suffisamment loin dans le temps pour pouvoir bien analyser l'évolution macroscopique du système.

Le choix s'est porté sur une discrétisation spatiale effectuée à l'aide de méthodes spectrales pour garantir une haute précision. Le coût de calcul en terme de nombre d'itérations temporelles est quant à lui réduit grâce à l'usage de schémas d'intégration temporelle semi-implicites et de différenciation exponentielle temporelle.

A. Méthodes spectrales

Les méthodes spectrales ont l'avantage majeur de profiter d'une convergence dite exponentielle – la plus rapide possible – quand la solution est suffisamment lisse [23]. L'idée générale est assez proche de celle des méthodes des éléments finis : des fonctions de base d'un espace quelconque $\hat{\mathcal{U}}$ sont utilisées pour construire une approximation discrète u^h à une EDP quelconque. La différence entre les deux provient du fait que les éléments finis prennent une approche *locale* (les fonctions de base sont non-nulles uniquement sur des sous-domaines spécifiques) tandis que les méthodes spectrales ont une approche *globale* (les fonctions de bases sont non-nulles sur le domaine entier).

Plus spécifiquement, dans le cas des méthodes spectrales dites de Fourier, une fonction périodique inconnue en 2D est écrite sous la forme d'une série de Fourier :

$$u(x, y) = \sum_{k_x=-\infty}^{+\infty} \sum_{k_y=-\infty}^{+\infty} \hat{u}(k_x, k_y) e^{-ik_x x} e^{-ik_y y} \quad (23)$$

dont il est très facile de calculer la dérivée. Ainsi, il est possible de discrétiser les opérateurs différentiels usuels dans le domaine de Fourier :

$$\begin{aligned} \nabla^2 &\leftrightarrow - (k_x^2 + k_y^2) = -k^2 \\ \nabla &\leftrightarrow i(k_x, k_y) = i\mathbf{k} \\ \nabla \cdot &\leftrightarrow i(k_x, k_y) \cdot = i\mathbf{k} \cdot \end{aligned} \quad (24)$$

où $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ est le vecteur du nombre d'onde dans l'espace de Fourier et $k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$ son amplitude. Noter qu'une extension de cette procédure en 3D (ou même en 1D) s'effectue de manière triviale.

En pratique, un domaine discret est défini sur une grille de $n \times n$ valeurs nodales et la série (23) est tronquée à ses n premiers termes, définissant ainsi un interpolateur à bande fréquentielle limitée (*bandlimited interpolant*). Les coefficients de Fourier $\hat{u}(k_x, k_y)$ peuvent également être calculés de manière très efficace grâce à l'algorithme de la FFT (*Fast Fourier Transform*) en $\mathcal{O}(n^2 \log n)$ opérations. Appliquer cette procédure à l'équation (14) permet donc d'obtenir le système de n^2 EDOs suivant :

$$\frac{\partial \hat{c}_{\mathbf{k}}}{\partial t} = -k^2 \{c^3 - c\}_{\mathbf{k}} - \kappa k^4 \hat{c}_{\mathbf{k}} \quad (25)$$

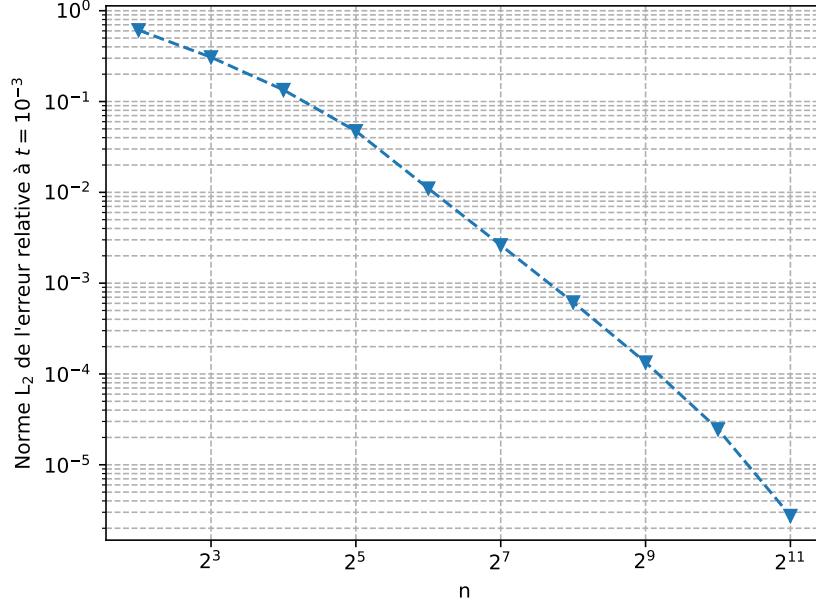


FIGURE 2: Convergence de l'erreur de la discréétisation spatiale. La solution est évaluée à l'aide d'un schéma ETDRK4 avec $\Delta t = 10^{-7}$ jusqu'à $t = 10^{-3}$. La solution de référence utilisée a été calculée avec $n = 4096$.

\hat{c}_k et $\{c^3 - c\}_k$ représentent la transformée de Fourier de c et $c^3 - c$, respectivement. Dès lors, il est possible de résoudre ce système d'EDO à l'aide de schémas d'intégration temporelle « classiques » et la solution $c(x, t)$ peut être obtenue en prenant la transformée de Fourier inverse de \hat{c}_k .

En pratique, nous avons tenté de confirmer que cette condition de « suffisamment lisse » était respectée pour l'équation de Cahn-Hilliard. Pour ce faire, nous avons considéré une initialisation non-aléatoire (contrairement à ce qui est utilisé ailleurs dans ce travail) en imposant une concentration $c = 1$ dans un carré placé au milieu du domaine et $c = -1$ autour. Nous avons considéré un domaine $\Omega = [0, 1]^2$ discréétisé par une grille de $n \times n$ points et avons résolu Cahn-Hilliard sur ce domaine jusqu'à $t = 10^{-3}$ avec $\kappa = 10^{-4}$. L'erreur a été estimée en interpolant les valeurs obtenues pour différents niveaux de discréétisation n sur la grille de la solution de référence (choisie avec $n = 4096$). Cette interpolation a été effectuée à l'aide d'un zero-padding dans le domaine spectral. Le résultat de cette analyse est montré à la FIGURE 2.

De manière évidente, il n'y a pas de convergence exponentielle, mais plutôt une sorte de convergence super-linéaire. Ces résultats ne nous permettent pas de conclure quoi que ce soit de manière certaine, étant donné que l'initialisation considérée est assez différente d'une initialisation aléatoire. Par contre, puisque l'interface entre deux phases devient de plus en plus fine (la dérivée première devient de plus en plus importante), il n'est pas complètement déraisonnable de supposer que la solution de Cahn-Hilliard n'est pas, en pratique, suffisamment lisse que pour pouvoir profiter de la convergence exponentielle des méthodes spectrales.

B. Intégration temporelle

La stabilité de l'EDO (25) peut être évaluée en calculant la matrice jacobienne du membre de droite autour d'un point \hat{c}_k et en évaluant ses valeurs propres :

$$\lambda_k = -k^2 \left(\frac{\partial}{\partial \hat{c}_k} \{c^3\}_k - 1 \right) - \kappa k^4 \quad (26)$$

L'évaluation de la dérivée du terme non-linéaire est non-triviale et fait intervenir des convolutions en 2D au minimum et n'est pas l'objectif de ce travail. Par contre, les valeurs propres de la partie linéaire se calculent facilement et valent :

$$\lambda_{L,k} = -\kappa k^4 \quad (27)$$

Comme toutes les $\lambda_k \Delta t$ doivent nécessairement rester à l'intérieur de la zone de stabilité de la méthode d'intégration temporelle utilisée, il en découle une contrainte sévère en $\mathcal{O}(h^{-4})$ (car $k \sim h^{-1}$) sur le pas de temps Δt . Par exemple, pour une schéma de Runge-Kutta classique d'ordre 4, il faudrait imposer $\Delta t < 6 \times 10^{-11}$ pour $\Omega = [0, 1]^2$, $n = 1024$ et $\kappa = 10^{-4}$, ce qui rendrait le temps de calcul beaucoup trop long.

Heureusement, l'équation de Cahn-Hilliard peut s'écrire comme la somme d'un terme linéaire d'ordre élevé (raide) et d'un terme non linéaire (non- ou moins raide) :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \mathcal{L}u + \mathcal{N}(u, t) \quad (28)$$

où \mathcal{L} et \mathcal{N} sont des opérateurs linéaires et non linéaires, respectivement. Après discréétisation de la partie physique :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \mathbf{Lu} + \mathbf{N}(u, t) \quad (29)$$

où, dans le cas de l'équation de Cahn-Hilliard, \mathbf{L} est une matrice diagonale dont les entrées valent $-\kappa k^4$ et $\mathbf{N} = -k^2 \{c^3 - c\}_k$.

Il est possible d'utiliser des méthodes spécifiques [24], [25] pour atténuer la contrainte sur le pas de temps tout en préservant une précision d'ordre élevé.

1) *Schémas implicites-explicites "IMEX"*: L'idée derrière les schémas IMEX est de résoudre la partie raide et linéaire de l'EDO en utilisant un schéma implicite et de résoudre la partie non-linéaire avec un schéma explicite. La formule générale pour les schémas IMEX à pas multiple est :

$$u_{n+1} = \sum_{j=0}^{m-1} a_j u_{n-j} + \sum_{j=0}^{m-1} \hat{b}_j \Delta t \mathbf{N}_{n-j} + \sum_{j=-1}^{m-1} b_j \Delta t \mathbf{Lu}_{n-j} \quad (30)$$

où m correspond au nombre de pas effectués. Les coefficients a_j , \hat{b}_j et b_j peuvent être trouvé dans [24] pour n'importe quel ordre jusqu'à 5. Dans ce rapport, nous utiliserons les schémas IMEX basés sur les méthodes dites de Gear ou BDF (*Backward Differentiation Formula*) d'ordre 2 et 4 pour lesquels les coefficients sont repris dans la Table I.

TABLE I: Coefficients pour les schémas IMEX-BDF [24]

Ordre	a_0	a_1	a_2	a_3	\hat{b}_0	\hat{b}_1	\hat{b}_2	\hat{b}_3	b_0
2	$\frac{4}{3}$	$-\frac{1}{3}$	0	0	$\frac{4}{3}$	$-\frac{2}{3}$	0	0	$\frac{2}{3}$
4	$\frac{48}{25}$	$-\frac{36}{25}$	$\frac{16}{25}$	$-\frac{3}{25}$	$\frac{48}{25}$	$-\frac{72}{25}$	$\frac{48}{25}$	$-\frac{12}{25}$	$\frac{12}{25}$

2) *Différenciation temporelle exponentielle:* L'intégration exacte de (29) d'un temps t_n à t_{n+1} peut être obtenue comme :

$$u_{n+1} = e^{\mathbf{L}\Delta t} u_n + e^{\mathbf{L}\Delta t} \int_0^{\Delta t} e^{-\mathbf{L}\tau} \mathbf{N}[u(t_n + \tau), t_n + \tau] d\tau \quad (31)$$

où le terme linéaire est intégré de manière exacte à l'aide de l'exponentielle matricielle, ce qui permet de réduire la contrainte imposée par ce terme. Cox et Matthews [26] ont dérivé un ensemble de formules permettant d'approximer l'intégrale du terme non linéaire, l'une d'entre elles utilisant un schéma de Runge-Kutta d'ordre 4 appelée ETDRK4 (*Exponential Time Differencing Runge-Kutta 4*). L'itération se calcule comme suit :

$$\begin{aligned} a_n &= e^{\mathbf{L}\Delta t/2} u_n + \delta \mathbf{N}(u_n, t_n) \\ b_n &= e^{\mathbf{L}\Delta t/2} u_n + \delta \mathbf{N}(a_n, t_n + \Delta t/2) \\ c_n &= e^{\mathbf{L}\Delta t/2} a_n + \delta [2\mathbf{N}(b_n, t_n + \Delta t/2) - \mathbf{N}(u_n, t_n)] \\ u_{n+1} &= e^{\mathbf{L}\Delta t} u_n + \alpha \mathbf{N}(u_n, t_n) + \beta [\mathbf{N}(a_n, t_n + \Delta t/2) \\ &\quad + \mathbf{N}(b_n, t_n + \Delta t/2)] + \gamma \mathbf{N}(c_n, t_n + \Delta t) \end{aligned} \quad (32)$$

où :

$$\begin{aligned} \alpha &= \Delta t^{-2} \mathbf{L}^{-3} [-4 - \mathbf{L}\Delta t + e^{\mathbf{L}\Delta t} (4 - 3\mathbf{L}\Delta t + (\mathbf{L}\Delta t)^2)] \\ \beta &= \Delta t^{-2} \mathbf{L}^{-3} [2 + \mathbf{L}\Delta t + e^{\mathbf{L}\Delta t} (-2 + \mathbf{L}\Delta t)] \\ \gamma &= \Delta t^{-2} \mathbf{L}^{-3} [-4 - 3\mathbf{L}\Delta t - (\mathbf{L}\Delta t)^2 + e^{\mathbf{L}\Delta t} (4 - \mathbf{L}\Delta t)] \\ \delta &= \mathbf{L}^{-1} [e^{\mathbf{L}\Delta t/2} - \mathbf{I}] \end{aligned} \quad (33)$$

Toutefois, une implémentation naïve du schéma ETDRK4 souffre d'instabilités numériques suite à l'évaluation de (33) à cause des erreurs d'arrondis en arithmétique à virgule flottante comme l'ont démontré Kassam et Trefethen [25]. Pour s'en convaincre, il suffit de prendre la fonction suivante :

$$f(z) = \frac{e^z - 1}{z} \quad (34)$$

et de l'évaluer pour des petites valeurs de z . Pour résoudre ce problème, Kassam et Trefethen proposent de se servir de l'analyse complexe et d'évaluer $f(z)$ via une intégrale d'un contour Γ contenant z :

$$f(z) = \frac{1}{2\pi i} \oint_{\Gamma} \frac{f(t)}{t - z} dt \quad (35)$$

Quand z devient une matrice \mathbf{L} , la même approche fonctionne. Il est dès lors possible d'évaluer les expressions $f(\mathbf{L})$ (33) en utilisant :

$$f(\mathbf{L}) = \frac{1}{2\pi i} \oint_{\Gamma} f(t) [t\mathbf{I} - \mathbf{L}]^{-1} dt \quad (36)$$

Quand \mathbf{L} est diagonal, l'évaluation de (36) peut être approchée en prenant la moyenne des points de $f(t)$ le long d'un cercle centré sur chaque élément de la diagonale \mathbf{L} . En pratique 32 ou 64 points sont suffisants. Cela permet aussi de grandement simplifier les calculs du schéma ETDRK4 tels que l'exponentielle matricielle, entre autres.

Une analyse complète de la stabilité des schémas présentés ci-dessus est effectuée dans [27]–[29]. La conclusion qui nous intéresse ici est que ces méthodes ont une région de stabilité qui comprend tout l'axe des réels négatifs. La contrainte sur les $\lambda_k \Delta t$ se réduit donc à une contrainte purement le long de l'axe imaginaire :

$$\Im\{\lambda_k \Delta t\} = -k^2 \Im\left[\frac{\partial}{\partial \hat{c}_{\mathbf{k}}} \{c^3\}_{\mathbf{k}}\right] \Delta t \quad (37)$$

qui doit rester en dessous de la valeur minimale de la région de stabilité le long de l'axe imaginaire. En pratique, il s'avère que cette contrainte est seulement en $\mathcal{O}(1)$: en effet, le schéma ETDRK4 reste stable pour $\Delta t = 10^{-4}$ jusqu'à $n = 4096$ (pour les mêmes paramètres que ceux utilisés sur la FIGURE 3). Cela signifie qu'il est possible de déterminer la contrainte sur le pas de temps Δt uniquement sur base de la précision souhaitée sans se soucier d'éventuelles instabilités du schéma numérique et ce quelle que soit la discrétisation utilisée.

La FIGURE 3 reprend l'analyse de convergence des différentes méthodes présentées ci-dessus. Les schémas IMEX ont un peu de mal à atteindre leur ordre de convergence, en particulier le schéma IMEX d'ordre 4 qui, de manière très surprenante, peine à converger à l'ordre deux ! Une possible explication de ce phénomène est donnée par [29], où ils suggèrent que les schémas IMEX sont sujets à des erreurs de dispersion. Des résultats assez similaires aux nôtres ont été observés dans leur analyse de certaines EDPs. C'est le schéma ETDRK4 qui donne l'erreur la plus petite pour un certain Δt et qui est le plus permisif d'un point de vue contrainte sur le pas de temps. Cela mène à la conclusion que le schéma ETDRK4 est particulièrement bien adapté à la résolution numérique de l'équation de Cahn-Hilliard, au moins pour les paramètres et discrétisations utilisés dans ce travail.

C. Cas d'une mobilité variable

En suivant la même procédure que celle développée pour l'équation de Cahn-Hilliard avec une mobilité constante, la transformée de Fourier de (22) donne le système d'EDO :

$$\frac{\partial \hat{c}_{\mathbf{k}}}{\partial t} = i\mathbf{k} \cdot \left\{ (1 - ac^2) [i\mathbf{k}' (\{c^3 - c\}_{\mathbf{k}} + \kappa k^2 \hat{c}_{\mathbf{k}})]_r \right\}_{\mathbf{k}} \quad (38)$$

où $[.]_r$ symbolise la transformée de Fourier inverse. De manière évidente, ce système d'EDO n'est plus de la forme (29) et est purement non-linéaire. Ainsi, les méthodes d'intégration numérique développées précédemment ne permettent plus de réduire la contrainte $\mathcal{O}(h^{-4})$ sur le pas de temps. Le seul moyen, à notre connaissance, d'ignorer cette contrainte serait d'utiliser des méthodes implicites en conjonction avec un schéma de Newton-Raphson. Toutefois, cet

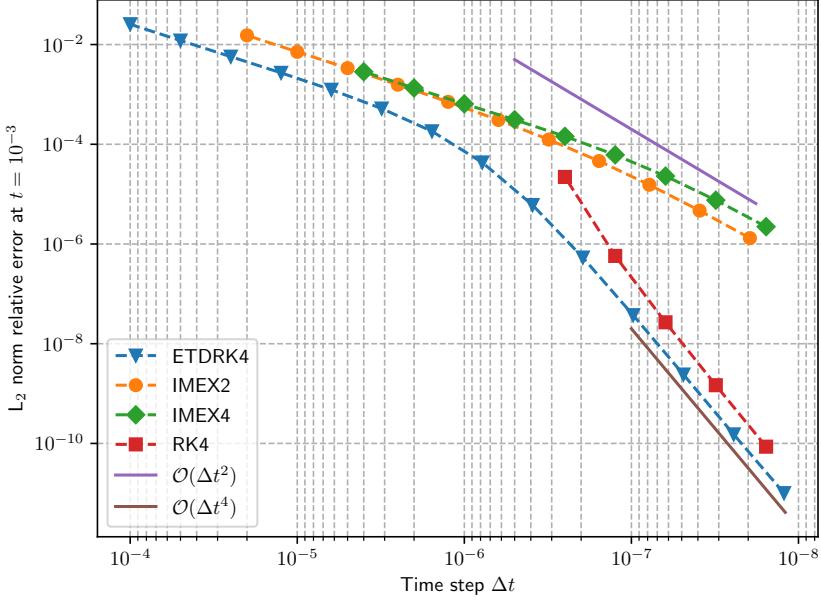


FIGURE 3: Convergence des différents schémas d'intégration temporelle pour $n = 128$, $\kappa = 10^{-4}$ et $\Omega = [0, 1]^2$. La norme L_2 de l'erreur relative est estimée en utilisant une solution de référence calculée à l'aide d'un schéma de Runge-Kutta 4 classique en utilisant $\Delta t = 10^{-9}$.

exercice est rendu difficile par le calcul non-trivial du jacobien du membre de droite de (38). Des itérations alternatives permettant d'approximer le jacobien pourraient être utilisées comme, par exemple, la méthode de la sécante. Cette piste n'a toutefois pas été poursuivie dans le cadre de ce travail.

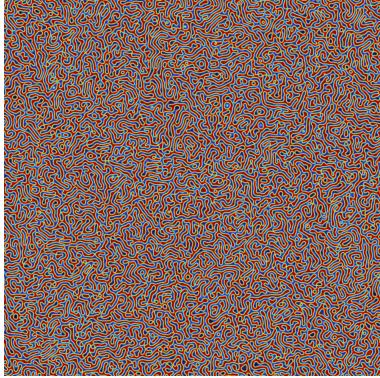
Zhu *et al.* [2] proposent une méthode qui permet de relaxer la contrainte sur le pas de temps Δt . Leur idée consiste à séparer la mobilité $(1 - ac^2)$ en deux termes, A et $(1 - ac^2) - A$ pour un paramètre A quelconque. L'équation ainsi transformée peut donc être traitée par les mêmes méthodes que celles utilisées pour la mobilité constante avec :

$$\begin{aligned} \mathbf{L} &= -k^4 \kappa A \\ \mathbf{N} &= i\mathbf{k} \cdot \left\{ (1 - ac^2 - A) [i\mathbf{k}' (\{c^3 - c\}_{\mathbf{k}} + \kappa k^2 \hat{c}_{\mathbf{k}})]_{\mathbf{r}} \right\}_{\mathbf{k}} - k^2 A \{c^3 - c\}_{\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (39)$$

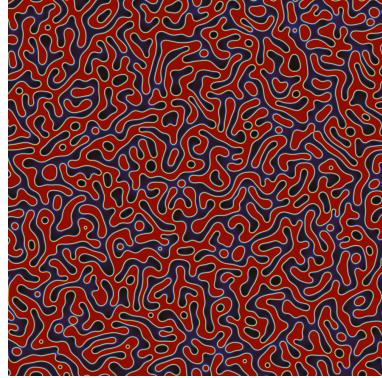
Choisir $A = 0.5 [\max(1 - ac^2) + \min(1 - ac^2)]$ permet d'avoir que :

$$|(1 - ac^2) - A| \leq A \quad (40)$$

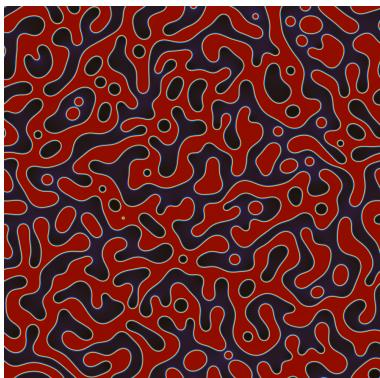
ce qui a pour effet de diminuer la contrainte sur le pas de temps. En pratique, il apparaît qu'une valeur $A \sim 0.5 \dots 0.7$ constitue une bonne approximation. Zhu *et al.* affirment qu'une contrainte en $\mathcal{O}(h^{-4})$ n'est ainsi plus nécessaire, mais nous n'avons pas observé le même résultat lors de nos simulations. Nous obtenons effectivement une relaxation légère d'un facteur constant ~ 4 , mais une contrainte d'ordre 4 reste présente. L'intégration numérique de (38) est bien plus coûteuse pour des discrétisations élevées que celle de (25). Nous recommandons en sus l'usage d'une méthode entièrement implicite pour la résolution de cette équation pour des petites valeurs de h , bien que le seuil à partir duquel le coût de calcul devient inacceptable varie d'un jeu de paramètres à un autre.



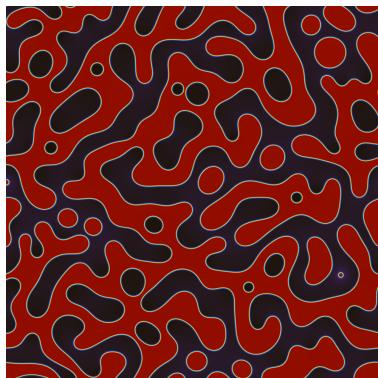
(a) $t = 100$



(b) $t = 2000$



(c) $t = 10000$



(d) $t = 30000$

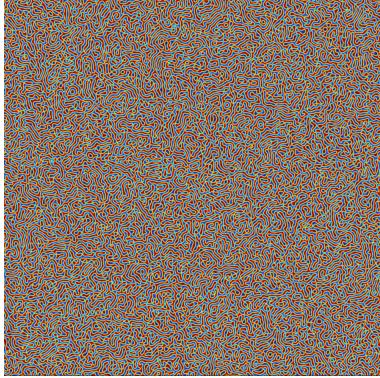
FIGURE 4: Simulation d'une décomposition spinodale où la diffusion de volume domine (mobilité constante). Les niveaux rouge et noir désignent respectivement la présence majoritaire de la phase α ou β . Le vert désigne quant à lui un mélange parfaitement homogène.

IV. RÉSULTATS

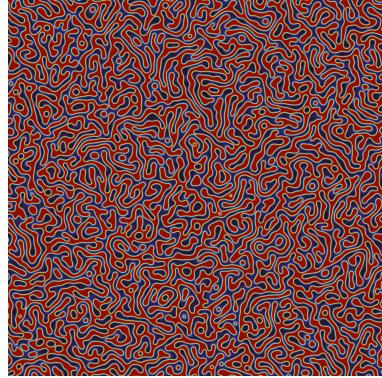
Une implémentation de haute qualité en C sur GPU a été réalisée en collaboration avec un travail pour un projet dans le cours de LMECA2300 à l'EPL et le code est disponible sur le répertoire GitHub [30]. Cette implémentation a été utilisée pour produire les résultats des simulations visible à la FIGURE 4 pour une mobilité constante et à la FIGURE 5 pour une mobilité non-constante. Les paramètres utilisés sont $\kappa = 1$, $\Delta t = 1$, $n = 1024$ et $\Omega = [0, 1024]^2$. Le domaine est choisi suffisamment grand pour diminuer l'impact des conditions frontières périodiques tout en gardant un pas de temps raisonnable pour pouvoir atteindre un état de régime dans des temps acceptables. Les conditions initiales sont générées de manière aléatoire entre -0.1 et 0.1 , ce qui correspond à un état à température élevée initialement homogène ($c(\mathbf{r}, t) = 0$) où la déviation de concentration d'une valeur moyenne nulle est uniquement causée par des fluctuations thermiques.

A. Évolution morphologique

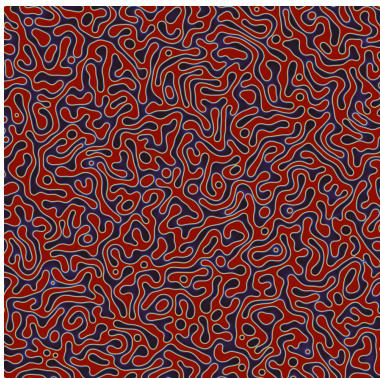
Les FIGURES 4 et 5 montrent l'évolution typique des patterns morphologiques lors d'une décomposition spinodale. Rapidement après le début de la simulation, des interfaces séparent deux phases apparaissent et forment des domaines qui vont s'épaissir au cours de la simulation. Cette évolution est beaucoup plus lente dans le cas de la mobilité variable, mais les patterns formés sont similaires quand ils sont comparés à des longueurs caractéristiques similaires.



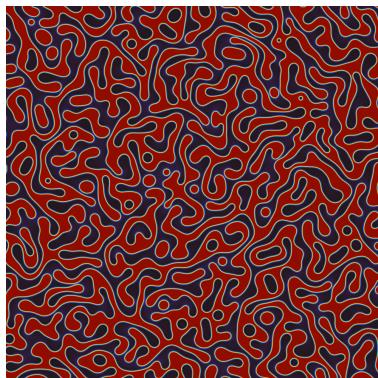
(a) $t = 100$



(b) $t = 2000$



(c) $t = 10000$



(d) $t = 30000$

FIGURE 5: Simulation d'une décomposition spinodale où la diffusion interfaciale domine (mobilité variable, $a = 1$). Les niveaux rouge et noir désignent respectivement la présence majoritaire de la phase α ou β . Le vert désigne quant à lui un mélange parfaitement homogène.

De fait, la morphologie après un certain temps devient indépendante du temps de simulation si toutes les longueurs sont remises à échelle grâce à une longueur caractéristique $L(t)$. L'évolution de cette dernière peut être étudiée grâce à la fonction de distribution radiale (ou fonction de corrélation de paires) :

$$G(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} S(\mathbf{k}, t) \quad (41)$$

où $S(\mathbf{k}, t)$ est la fonction de structure. C'est principalement cette dernière qui sera utilisée pour étudier l'évolution de la longueur caractéristique $L(t)$. Zhu *et al.* utilisent la définition suivante :

$$S(\mathbf{k}, t) = \left\langle \sum_{\mathbf{r}} \sum_{\mathbf{r}'} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} [c(\mathbf{r} + \mathbf{r}', t)c(\mathbf{r}', t) - \langle c \rangle^2] \right\rangle \quad (42)$$

où $\langle \cdot \rangle$ dénote la moyenne sur un échantillon statistiquement suffisamment grand et $\langle c \rangle$ est la moyenne de $c(\mathbf{r}, t)$ sur tout Ω .

En pratique, il est possible de calculer ce facteur de manière simple comme suit [31] :

$$S(\mathbf{k}, t) = \frac{\hat{c}_{\mathbf{k}} \hat{c}_{\mathbf{k}}^*}{\alpha} \quad (43)$$

où $\hat{c}_{\mathbf{k}}$ est, ici, la transformée de Fourier de $c(\mathbf{r}, t) - \langle c \rangle$ et α un facteur de normalisation qui

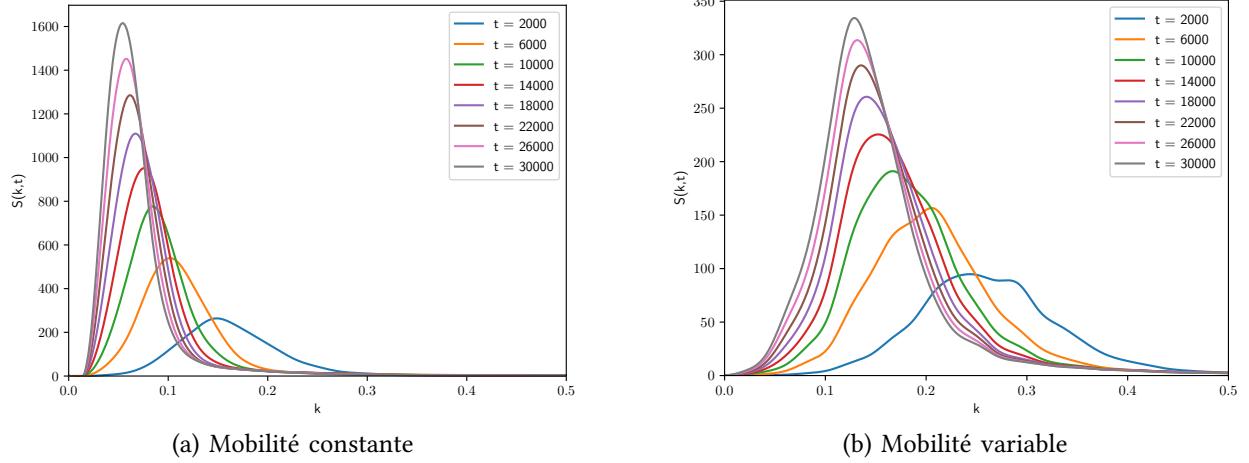


FIGURE 6: Fonction de structure

peut être calculé en utilisant l'identité de Parseval :

$$\sum_{\mathbf{r}} [c(\mathbf{r}, t) - \langle c \rangle]^2 = \sum_{\mathbf{k}} S(\mathbf{k}, t) \quad (44)$$

Comme le système étudié ici est isotrope, il est possible d'utiliser la moyenne circulaire $S(k, t)$ de la fonction de structure, calculée en intégrant $S(\mathbf{k}, t)$ le long d'un cercle de rayon k . Cette fonction est représentée à la FIGURE 6 dans le cas de la décomposition spinodale simulée dans ce travail. Le même raisonnement s'applique à $G(\mathbf{r}, t)$ pour obtenir $G(r, t)$.

L'intérêt d'utiliser ces deux fonctions pour l'étude de l'évolution morphologique d'une décomposition spinodale réside dans le fait qu'elles dépendent toutes les deux du temps uniquement à travers $L(t)$:

$$\begin{aligned} G(r, t) &= \mathcal{G}(r/L(t)) \\ S(k, t) &= L(t)^d \mathcal{F}(kL(t)) \end{aligned} \quad (45)$$

où \mathcal{G} et \mathcal{F} sont deux fonctions d'évolution du système et qui sont indépendantes du temps et d correspond au nombre de dimensions ($d = 2$ ici).

Il existe plusieurs manières de caractériser $L(t)$; la plus pratique à utiliser et qui est employée dans ce travail est le premier moment de $S(k, t)$ défini par :

$$k_1(t) = \frac{\sum_k k S(k, t)}{\sum_k S(k, t)} \quad (46)$$

En définissant $L(t) = 1/k_1(t)$, la fonction d'évolution est $\mathcal{F}(k/k_1, t) = k_1^2(t) S(k, t)$. Si les hypothèses réalisées tiennent, il devrait en découler que $\mathcal{F}(k/k_1, t) = \mathcal{F}(k/k_1)$, ce qui est vérifié en pratique sur la FIGURE 7. Les différents points sont tous alignés le long d'une même courbe. De plus, il est intéressant de remarquer que le comportement entre les deux dynamiques de diffusion simulées sont assez similaires en pratique.

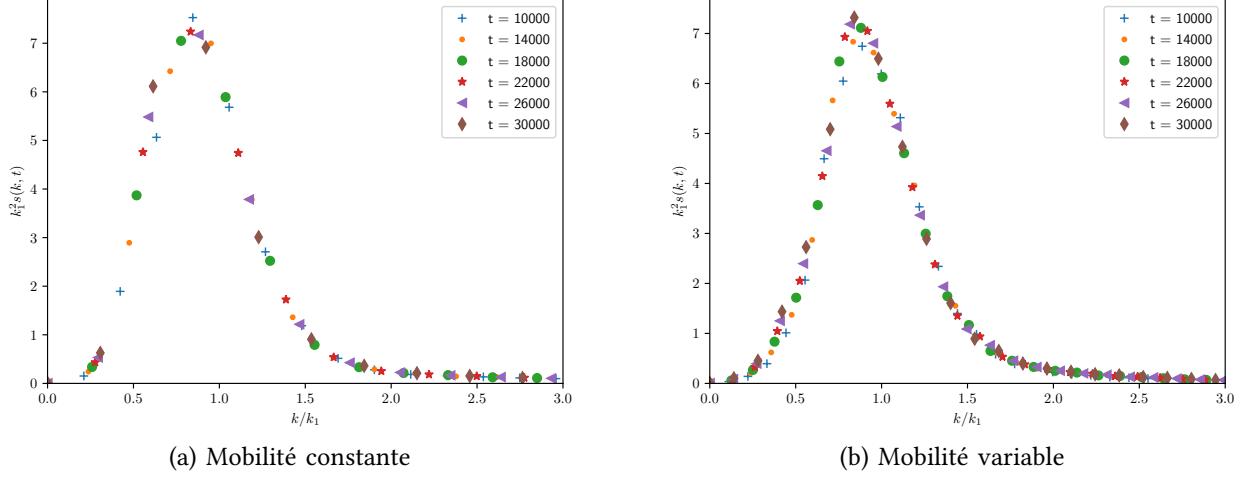


FIGURE 7: Fonction d'évolution en fonction de k/k_1 pour différents temps « longs »

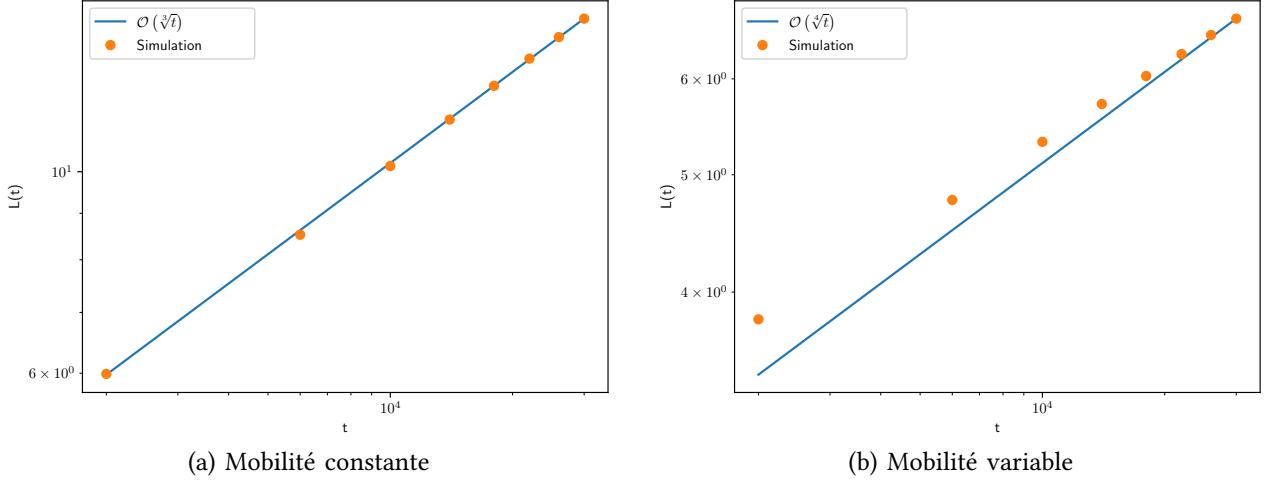


FIGURE 8: Évolution de la longueur caractéristique $L(t)$

B. Loi d'évolution

Une conséquence importante de l'évolution dynamique du système est que la longueur caractéristique $L(t)$ évolue en suivant une loi de puissance, du moins pour des temps « longs ». Différents travaux théoriques montrent que $L(t) \sim t^{1/3}$ dans le cas d'une mobilité constante et $L(t) \sim t^{1/4}$ pour une mobilité variable. Zhu *et al.* vérifient ces résultats en pratique lors de leurs simulations et nous arrivons aux mêmes conclusions lors des nôtres. La FIGURE 8 montre l'évolution de $L(t)$ avec à chaque fois la courbe de référence appropriée. Les petites différences obtenues pour la mobilité variable ($L(t) \sim t^{1/4.4}$ dans nos simulations) peuvent provenir de l'absence d'un échantillon suffisamment grand. Idéalement, il faudrait effectuer la même simulation plusieurs fois pour différentes conditions initiales et prendre la moyenne des résultats, ce que nous n'avons pas fait. Notons néanmoins que Lacasta *et al.* présentent les mêmes résultats que les nôtres dans leurs travaux [32].

V. NOTRE AVIS SUR LE PAPIER

Nous avons trouvé le travail de Zhu *et al.* de bonne qualité. Ils expliquent leur méthodologie et l'origine du modèle étudié de manière claire et concise. Toutefois, nous aimerais quand même faire quelques remarques :

- Bien que le schéma semi-implicite de second ordre proposé dans le papier fournit des résultats légèrement plus précis que celui de premier ordre, les gains restent assez faibles (l'erreur estimée est environ divisée par 2 pour un pas de temps $\Delta t = 1$). Des gains en précision bien plus importants peuvent être obtenus en utilisant d'autres schémas numériques, tels que celui que nous avons présenté et qui est basé sur la différenciation exponentielle temporelle (qui fournit une erreur estimée environ 2 ordres de grandeur plus faibles pour $\Delta t = 1$!).
- Dans le même sens que la remarque précédente, l'affirmation que le schéma proposé pour la mobilité variable rendait une contrainte en $\mathcal{O}(h^{-4})$ « no longer necessary » nous a fortement étonnés. Effectivement, nous avons bien observé une relaxation de la contrainte sur le pas de temps d'un certain facteur constant, mais pas de manière aussi importante qu'ils semblaient le suggérer. Ceci est peut-être en lien avec le point suivant.
- Il y a un manque de clarté concernant les paramètres de simulation utilisés, ce qui complexifie la reproduction de leurs résultats. Effectivement, nous n'avons trouvé nulle part dans leur papier les valeurs exactes des paramètres κ et a qu'ils avaient utilisés et qui sont pourtant des paramètres majeurs. Ayant au final obtenu des résultats légèrement différents qu'eux dans le cas d'un mode de diffusion dominé par la diffusion d'interface, nous ne savons donc pas si cette différence s'explique par le choix de paramètres (en particulier, le paramètre a) qui varie légèrement entre leurs simulations et les nôtres ou bien s'il s'agit d'une erreur ou d'un manque de précision de notre part. Notons néanmoins que les auteurs eux-mêmes soulignent qu'ils obtiennent des résultats différents que ceux avancés par Lacasta *et al.* [32], et que nous tombons, dans ce cas, sur la même valeur que ce dernier papier.
- Certaines formules utilisées (par exemple, celle pour calculer le facteur de structure) étaient expliquées de manière assez obscure. Quelques détails supplémentaires sur la manière dont ils évaluaient ces fonctions caractéristiques auraient été bienvenus ; surtout que cette fonction est centrale dans leur analyse.

Par ailleurs, nous trouvons que le code écrit dans le cadre de travaux publiés est tout aussi important que le papier en lui-même. Il est donc dommage que celui-ci ne soit pas rendu public avec le papier. Effectivement, rendre ce dernier public permettrait aux autres scientifiques lisant le travail de pouvoir directement vérifier les résultats produits sur base de l'exactitude de l'implémentation, voire même de pouvoir construire par-dessus et ainsi pouvoir creuser le sujet plus en détails sans nécessairement perdre du temps à devoir implémenter à nouveau les bases. Cela aurait également permis d'éviter le peu de points négatifs que nous avons pu reprocher à ce travail.

Dans cet esprit, l'entièreté du code que nous avons pu écrire pour produire les résultats présentés dans le présent rapport est publiquement disponible sur le répertoire GitHub [30].

VI. CONCLUSION

Pour construire l'équation de Cahn-Hilliard (où l'agitation thermique est négligée), nous partons de la Loi de Fick, afin d'exprimer le flux de concentration en fonction du potentiel chimique. À cela nous appliquons l'équation de continuité et nous obtenons une équation de diffusion du potentiel chimique. Il faut alors trouver un modèle constitutif pour ce potentiel chimique. Pour ce faire nous utilisons le développement en série de Taylor (tronqué) de l'énergie libre, ce qui permet de séparer l'énergie de gradient et f_0 , l'énergie libre qu'aurait la solution si elle était homogène. Il faut ensuite trouver un modèle pour f_0 , qui doit être un double puits de potentiel (sinon il n'y a pas de séparation de phase). Ceci peut être fait grâce à la thermodynamique, ce qui donne un modèle en log que nous approximons par une fonction polynomiale. En parallèle, un modèle pour la mobilité est nécessaire. Étant donné que la diffusion se passe à l'interface entre les deux phases, il faut que la mobilité s'annule en un point éloigné de cette interface, autrement dit lorsque de la concentration atteint ses bornes. Deux modèles ont été présentés ici : une mobilité constante sur l'interface, ou une mobilité correspondant au produit des concentrations des deux espèces et de la mobilité moyenne des deux espèces. Dans le papier de référence, les auteurs considèrent un modèle paramétrique mixte, permettant de passer de l'un à l'autre. Finalement, étant donné qu'à l'équilibre l'agitation thermique n'est plus négligeable comme source de diffusion, Cook propose d'ajouter un terme stochastique à l'équation de Cahn-Hilliard, mais l'importance de ce terme est encore contestée.

Ensuite, la résolution de cette équation est effectuée grâce à une méthode spectrale, garantissant une haute précision dans la discréétisation physique de l'équation. L'équation de Cahn-Hilliard faisant intervenir un terme d'ordre 4, les contraintes sur le pas de temps d'un schéma d'intégration temporel sont assez élevées, menant à des temps de simulation potentiellement inacceptables. Ce problème a été en partie résolu par Zhu *et al.* en faisant usage de méthodes semi-implicites de type IMEX. Nous avons étendu leur approche à une méthode d'ordre 4 en utilisant un schéma d'intégration temporelle exponentielle, ETDRK4. Nous avons montré l'efficacité supérieure de ce schéma par rapport aux méthodes IMEX dans le cas de l'équation de Cahn-Hilliard. Toutefois, ces méthodes ne permettent pas d'obtenir les mêmes gains pour l'équation avec une mobilité variable, contrairement à ce que semblaient dire Zhu *et al.*

Pour finir, nous avons analysé les impacts sur l'évolution morphologique de long terme des deux modes de diffusion présents dans la théorie de Cahn et Hilliard. Nous sommes arrivés presque aux mêmes conclusions que Zhu *et al.*, à savoir que $L(t) \sim t^{1/3}$ quand la diffusion de volume domine et $L(t) \sim t^{1/4.4}$ quand c'est la diffusion interfaciale qui domine.

REMERCIEMENTS

Nous désirons remercier le Pr. Alain Jonas pour ses conseils pour le calcul du facteur de structure et le Pr. Roland Keunings pour le temps passé à répondre à nos questions, ainsi que pour son excellent cours sur la modélisation mathématique de phénomènes physiques.

RÉFÉRENCES

- [1] J. Kim, S. Lee, Y. Choi, S.-M. Lee, and D. Jeong, “Basic principles and practical applications of the Cahn–Hilliard equation,” *Mathematical Problems in Engineering*, vol. 2016, 2016.
- [2] J. Zhu, L.-Q. Chen, J. Shen, and V. Tikare, “Coarsening kinetics from a variable-mobility Cahn-Hilliard equation : Application of a semi-implicit fourier spectral method,” *Phys. Rev. E*, vol. 60, pp. 3564–3572, Oct 1999. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.60.3564>
- [3] H. Cook, “Brownian motion in spinodal decomposition,” *Acta metallurgica*, vol. 18, no. 3, pp. 297–306, 1970.
- [4] C. G. Gal and M. Grasselli, “Asymptotic behavior of a Cahn–Hilliard–Navier–Stokes system in 2d,” in *Annales de l'IHP Analyse non linéaire*, vol. 27, no. 1, 2010, pp. 401–436.
- [5] L. Cherfils, A. Miranville, and S. Zelik, “The Cahn–Hilliard equation with logarithmic potentials,” *Milan Journal of Mathematics*, vol. 79, no. 2, pp. 561–596, 2011.
- [6] F. Vermolen, M. G. Gharasoo, P. L. Zitha, and J. Bruining, “Numerical solutions of some diffuse interface problems : The Cahn–Hilliard equation and the model of thomas and windle,” *International Journal for Multiscale Computational Engineering*, vol. 7, no. 6, 2009.
- [7] G. N. Wells, E. Kuhl, and K. Garikipati, “A discontinuous Galerkin method for the Cahn–Hilliard equation,” *Journal of Computational Physics*, vol. 218, no. 2, pp. 860–877, 2006.
- [8] D. Furihata, “A stable and conservative finite difference scheme for the Cahn–Hilliard equation,” *Numerische Mathematik*, vol. 87, no. 4, pp. 675–699, 2001.
- [9] K. Cheng, W. Feng, C. Wang, and S. M. Wise, “An energy stable fourth order finite difference scheme for the Cahn–Hilliard equation,” *Journal of Computational and Applied Mathematics*, vol. 362, pp. 574–595, 2019.
- [10] D. Furihata and T. Matsuo, “A stable, convergent, conservative and linear finite difference scheme for the Cahn–Hilliard equation,” *Japan journal of industrial and applied mathematics*, vol. 20, no. 1, pp. 65–85, 2003.
- [11] J. Shen and X. Yang, “Numerical approximations of Allen–Cahn and Cahn–Hilliard equations,” *Discrete & Continuous Dynamical Systems-A*, vol. 28, no. 4, p. 1669, 2010.
- [12] J. W. Cahn and J. E. Hilliard, “Free energy of a nonuniform system. I. Interfacial free energy,” *The Journal of chemical physics*, vol. 28, no. 2, pp. 258–267, 1958.
- [13] P. W. Atkins and L. L. Jones, *Chemical Principles – The Quest for Insight*, 5th ed. W. H. Freeman and Company, 2010.
- [14] T. Ursell, “Phase separation in a diffuse system and the Cahn-Hilliard equation,” 2015.
- [15] C. Cardon-Weber, “Cahn-Hilliard stochastic equation : existence of the solution and of its density,” *Bernoulli*, vol. 7, no. 5, pp. 777 – 816, 2001.
- [16] J. Barrett and J. Blowey, “Modelling and visualizing the Cahn–Hilliard–Cook equation,” *Math. Comput.*, vol. 68, pp. 487–517, 1999.
- [17] J. Cui and J. Hong, “Absolute continuity and numerical approximation of stochastic Cahn–Hilliard equation with unbounded noise diffusion,” *Journal of Differential Equations*, vol. 269, no. 11, pp. 10 143–10 180, 2020.
- [18] D. Blömker, S. Maier-Paape, and T. Wanner, “Spinodal decomposition for the Cahn–Hilliard–Cook equation,” *Communications in Mathematical Physics*, vol. 223, no. 3, pp. 553–582, 2001.
- [19] J. W. Cahn and J. E. Taylor, “Overview no. 113 surface motion by surface diffusion,” *Acta metallurgica et materialia*, vol. 42, no. 4, pp. 1045–1063, 1994.
- [20] J. Langer, M. Bar-On, and H. D. Miller, “New computational method in the theory of spinodal decomposition,” *Physical Review A*, vol. 11, no. 4, p. 1417, 1975.
- [21] M. I. M. Copetti and C. M. Elliott, “Numerical analysis of the Cahn-Hilliard equation with a logarithmic free energy,” *Numerische Mathematik*, vol. 63, no. 1, pp. 39–65, 1992.
- [22] R. Toral, A. Chakrabarti, and J. D. Gunton, “Numerical study of the Cahn–Hilliard equation in three dimensions,” *Physical review letters*, vol. 60, no. 22, p. 2311, 1988.
- [23] L. N. Trefethen, *Spectral methods in MATLAB*. SIAM, 2000.
- [24] W. Hundsdorfer and S. J. Ruuth, “IMEX extensions of linear multistep methods with general monotonicity and boundedness properties,” *Journal of Computational Physics*, vol. 225, no. 2, pp. 2016–2042, 2007. [Online]. Available : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021999107001003>
- [25] A.-K. Kassam and L. N. Trefethen, “Fourth-order time-stepping for stiff PDEs,” *SIAM Journal on Scientific Computing*, vol. 26, no. 4, pp. 1214–1233, 2005. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1137/S1064827502410633>

- [26] S. Cox and P. Matthews, “Exponential time differencing for stiff systems,” *Journal of Computational Physics*, vol. 176, no. 2, pp. 430–455, 2002. [Online]. Available : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021999102969950>
- [27] U. M. Ascher, S. J. Ruuth, and B. T. Wetton, “Implicit-explicit methods for time-dependent partial differential equations,” *SIAM Journal on Numerical Analysis*, vol. 32, no. 3, pp. 797–823, 1995.
- [28] Q. Du and W. Zhu, “Analysis and applications of the exponential time differencing schemes and their contour integration modifications,” *BIT Numerical Mathematics*, vol. 45, no. 2, pp. 307–328, 2005.
- [29] I. Grooms and K. Julien, “Linearly implicit methods for nonlinear PDEs with linear dispersion and dissipation,” *Journal of Computational Physics*, vol. 230, no. 9, pp. 3630–3650, 2011.
- [30] A. Quiriny and G. Poncelet, “Cahn-Hilliard,” <https://github.com/SnaKyEyeS/Cahn-Hilliard>, May 2021.
- [31] N. Lecoq, H. Zapsolsky, and P. Galenko, “Evolution of the structure factor in a hyperbolic model of spinodal decomposition,” *The European Physical Journal Special Topics*, vol. 177, no. 1, pp. 165–175, 2009.
- [32] A. M. Lacasta, A. Hernández-Machado, J. M. Sancho, and R. Toral, “Domain growth in binary mixtures at low temperatures,” *Phys. Rev. B*, vol. 45, pp. 5276–5281, Mar 1992. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.45.5276>