



# ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE DES MINES DE SAINT-ÉTIENNE

PROJET ECOREVE

RAPPORT DE STAGE

---

**Caractérisation et modélisation de micro-structures d'électrodes par analyse d'image et géométrie stochastique. Application aux cellules à oxyde solide.**

---

*Auteur :*

THEODON Léo



Date : 6 septembre 2021



## ***Avant-propos***

Le projet ECOREVE (ANR-18-CE05-0036) traite de l'électrolyse à haute température par vapeur en utilisant des cellules à oxyde solide (SOC). L'objectif est d'optimiser la micro-structure et l'architecture des électrodes afin d'améliorer la performance et la durabilité des SOCs, ce qui constitue un défi technologique majeur.

Pour guider et optimiser la fabrication des électrodes, les propriétés électrochimiques peuvent être modélisées par la génération de micro-structures numériques validées sur des reconstructions tridimensionnelles réelles d'électrodes.

En effet, les électrodes ont une micro-structure fine et complexe qui joue un rôle clé dans la performance et la durabilité des cellules. Des simulations à l'échelle microscopique peuvent être réalisées afin de guider l'analyse du rôle de la micro-structure ainsi que la relation entre les mécanismes de réaction élémentaires aux électrodes et les phénomènes de dégradation des cellules.

Le but de ce stage est alors de modéliser et caractériser la micro-structure des SOCs. De précédents travaux ont été réalisés sur des structures spatialement homogènes. Néanmoins, les phénomènes de dégradation des cellules au fil du temps peuvent faire apparaître de l'hétérogénéité au sein de la micro-structure avec l'apparition de gradient de phase. On essaiera donc de créer un modèle de micro-structure flexible, puis de l'ajuster aux données réelles à l'issue d'un processus d'optimisation.

Enfin, on explorera la possibilité d'ajouter une composante temporelle à notre modèle, afin de prendre en compte la détérioration de la micro-structure et l'évolution des caractéristiques du milieu.

La mise au point d'un tel modèle doit permettre in fine de pouvoir produire une micro-structure réaliste dont les caractéristiques (fraction volumique, densité surfacique et de points triples, etc...) seraient définies par l'utilisateur. Cela permettrait alors de pouvoir effectuer des simulations sur un grand nombre de micro-structures virtuelles, en faisant varier les paramètres, de sorte à améliorer les performances des cellules.

# Table des matières

<i>Avant-propos</i>	i
<b>Introduction</b>	1
<b>1 État de l'art</b>	2
1.1 Modélisation de micro-structures . . . . .	2
1.1.1 Modélisation par sphères dures . . . . .	2
1.1.2 Modélisation par champs Gaussiens tronqués . . . . .	5
1.1.3 Modélisation par champs de $\chi^2$ tronqués . . . . .	8
1.1.4 Modélisation par systèmes de particules et champs Gaussiens . . . . .	9
1.1.5 Modélisation par $\beta$ -squelettes . . . . .	10
1.2 Correspondance de graphes . . . . .	11
1.2.1 Fast Approximate Quadratic Programming for Graph Matching . . . . .	11
1.2.2 Correspondance de graphes avec attributs . . . . .	11
1.3 Évolution temporelle de micro-structures . . . . .	12
1.4 Synthèse . . . . .	13
1.4.1 Avantages, inconvénients et limites . . . . .	13
1.4.2 Notre contribution . . . . .	13
<b>2 Définition du modèle</b>	15
2.1 Idée générale . . . . .	15
2.2 Définition . . . . .	16
2.3 Modélisation d'une micro-structure . . . . .	18
2.4 Introduction de paramètres supplémentaires . . . . .	21
2.4.1 Distance paramétrique . . . . .	21
2.4.2 Lissage . . . . .	24
2.5 Enrichissement du modèle et exemples . . . . .	26
2.5.1 Micro-structure biphasée et enrobage . . . . .	26
2.5.2 Modélisation d'interface et gradients de distance . . . . .	27
2.5.3 Agrégation de points, clusters et macro-pores . . . . .	28
<b>3 Correspondance de graphes</b>	30
3.1 Définition . . . . .	30
3.1.1 Métrique et géodésiques . . . . .	30
3.1.2 Permutations et espace quotient . . . . .	31
3.1.3 Problème de correspondance de graphes . . . . .	32
3.1.4 Prise en compte des attributs des sommets . . . . .	34
3.2 Exemples . . . . .	37
3.2.1 Correspondance de $\beta$ -squelettes . . . . .	37
3.2.2 Lissage temporel . . . . .	38
3.2.3 Graphes de $\mathbb{R}^3$ et gradient spatial . . . . .	40

<b>4 Résultats</b>	<b>42</b>
4.1 Optimisation et validation d'une micro-structure virtuelle . . . . .	42
4.1.1 Optimisation . . . . .	42
4.1.2 Validation . . . . .	44
4.2 Interpolation de micro-structures . . . . .	47
4.3 Perspectives . . . . .	49
<b>Conclusion</b>	<b>52</b>
<b>Références</b>	<b>53</b>

## Introduction

Depuis très longtemps, les seules techniques permettant de caractériser les micro-structures des cellules à oxyde solide (SOC) consistaient à sectionner un échantillon et à l'observer à l'aide d'un microscope électronique, de rayons X, ou tout autre méthode destructive.

Ce processus se révèle extrêmement coûteux, que ce soit en temps ou en ressources, puisqu'il est nécessaire de produire une cellule, et éventuellement de l'utiliser, avant de la détruire pour pouvoir l'étudier et la caractériser.

C'est pour cette raison que l'on s'intéresse à la notion de jumeau numérique, qui permet en particulier de caractériser des micro-structures virtuelles, plutôt que réelles. Pour ce faire, il nous est nécessaire d'ajuster les modèles aux données réelles, et c'est pourquoi nous utiliserons des reconstructions 3D de micro-structures d'électrodes (cf. figure 8) obtenues à l'aide d'une technique non-destructive, cette fois, à savoir la tomographie, sur une longueur quelques nanomètres. Les images sont ensuite segmentées par la méthode d'Otsu, ce qui permet finalement d'identifier les trois différentes phases, et d'obtenir une représentation numérique de la micro-structure réelle, sur laquelle nous nous baserons lors de la conception de notre modèle.

Les cellules à oxyde solide sont des micro-structures triphasées spatialement hétérogènes (poreuse, céramique ou zircone, et métallique ou nickel). Des travaux ont déjà été réalisés dans le cadre de micro-structures spatialement homogènes en utilisant des modèles à base de sphères dures [10] ou de champs Gaussiens tronqués [11].

Dans ce rapport, nous explorerons une autre approche, en nous appuyant sur un article [12] proposant l'utilisation de  $\beta$ -squelettes afin de modéliser des micro-structures à trois phases complètement connectées. Fondamentalement, les  $\beta$ -squelettes sont des graphes non-orientés, et à chaque phase est associé un graphe. Le paramétrage de chacun des graphes devra nous permettre d'agir sur les caractéristiques de la micro-structure du modèle comme la fraction volumique de chacune des phases, la densité surfacique ou encore celle des points triples pour ne citer qu'elles, et, à terme, d'introduire plus aisément des composantes hétérogènes réalistes telles que des macro-pores ou encore la possibilité de modéliser l'interface avec l'électrolyte.

Enfin, l'utilisation de graphes comme objet de base pour la modélisation de la micro-structure devrait nous permettre d'ajouter une dimension temporelle à notre modèle. En effet, lors de leur utilisation, les cellules oxyde solide ont tendance à chauffer, ce qui entraîne une dégradation de la structure et en particulier la coalescence de la phase métallique. Ainsi, en nous appuyant sur la notion de *graph matching* ([7] et [17]), il nous sera possible de modéliser l'évolution temporelle de la micro-structure par interpolation entre deux états à des temps d'utilisation différents.

# 1 État de l'art

## 1.1 Modélisation de micro-structures

### 1.1.1 Modélisation par sphères dures

#### Présentation du modèle

L'article de H. Moussaoui [10] intitulé *Particle-based model for functional and diffusion layers of solid oxide cells electrodes* nous propose un modèle de micro-structure multi-phase basé sur l'utilisation de champs de sphères dures.

Le processus de génération du modèle, illustré par la figure 1, se déroule de la façon suivante.

#### a) Allocation initiale des sphères

Il s'agit tout d'abord de remplir un volume  $V$  avec des sphères dont la PSD (*Particle Size Distribution*) a une grande influence sur les caractéristiques finales de la micro-structure. Il apparaît par ailleurs qu'une distribution de type Weibull est la mieux adaptée, ce qui est d'autant plus heureux que ce type de distribution est également utilisé pour la caractérisation des poudres que l'on utilise pour produire les cellules oxyde solide que l'on cherche à modéliser.

Une distribution de Weibull est définie comme suit

$$f_W(r; k, \lambda) = \frac{k}{\lambda} \left( \frac{r}{\lambda} \right)^{k-1} e^{-r/\lambda} \quad (1.1)$$

avec  $r$  la variable aléatoire correspondant au rayon des sphères,  $k$  le paramètre de forme, et  $\lambda$  celui d'échelle. La moyenne  $\mu_W$  et la variance  $\sigma_W^2$  de cette distribution s'expriment comme suit

$$\mu_W = \lambda \Gamma \left( 1 + \frac{1}{k} \right) \text{ et } \sigma_W^2 = \lambda^2 \Gamma \left( 1 + \frac{2}{k} \right) - \mu_W^2 \quad (1.2)$$

avec  $\Gamma$  la fonction Gamma d'Euler<sup>1</sup>, et dépendent uniquement des deux paramètres  $k$  et  $\lambda$ .

Enfin, la répartition spatiale des sphères ayant également une grande influence sur les caractéristiques finales de la micro-structure, on opère une division du domaine  $V$  en  $n_s^3$  sous-volumes  $U_i$  et l'on s'assure que chacun des sous-volumes contient une sphère. Le nombre initial de sphère  $n_s$  est alors un paramètre supplémentaire du modèle.

---

<sup>1</sup>On a  $\Gamma(x) = \int_0^{+\infty} t^{x-1} e^{-t} dt$  pour  $x \in \mathbb{R}_+^*$ .

### b) Remplissage du volume

Après avoir positionné les premières  $n_s$  sphères dans chacun des sous-volumes  $U_i$ , on se propose de remplir l'espace en ajoutant de nouvelles sphères dont le rayon suit la même PSD que précédemment, à l'aide d'un processus itératif. En effet, chaque nouvelle sphère doit être en contact avec une autre, tout en autorisant un léger recouvrement.

Pour deux sphères  $S_i$  et  $S_j$  de rayons respectifs  $r_i$  et  $r_j$ , la distance entre les centres de ces sphères est

$$d_{ij} = \frac{r_i + r_j}{2} \times (1 + u) \quad \text{avec } u \sim \mathcal{U}([0; 1]). \quad (1.3)$$

Ainsi, le recouvrement de deux sphères est uniformément distribué entre le recouvrement maximal avec  $d_{ij} = (r_i + r_j)/2$  et le contact ponctuel avec  $d_{ij} = (r_i + r_j)$ .

De plus, il convient de s'assurer que la direction dans laquelle on ajoute une nouvelle sphère est déterminée de manière totalement uniforme. Enfin, afin d'éviter

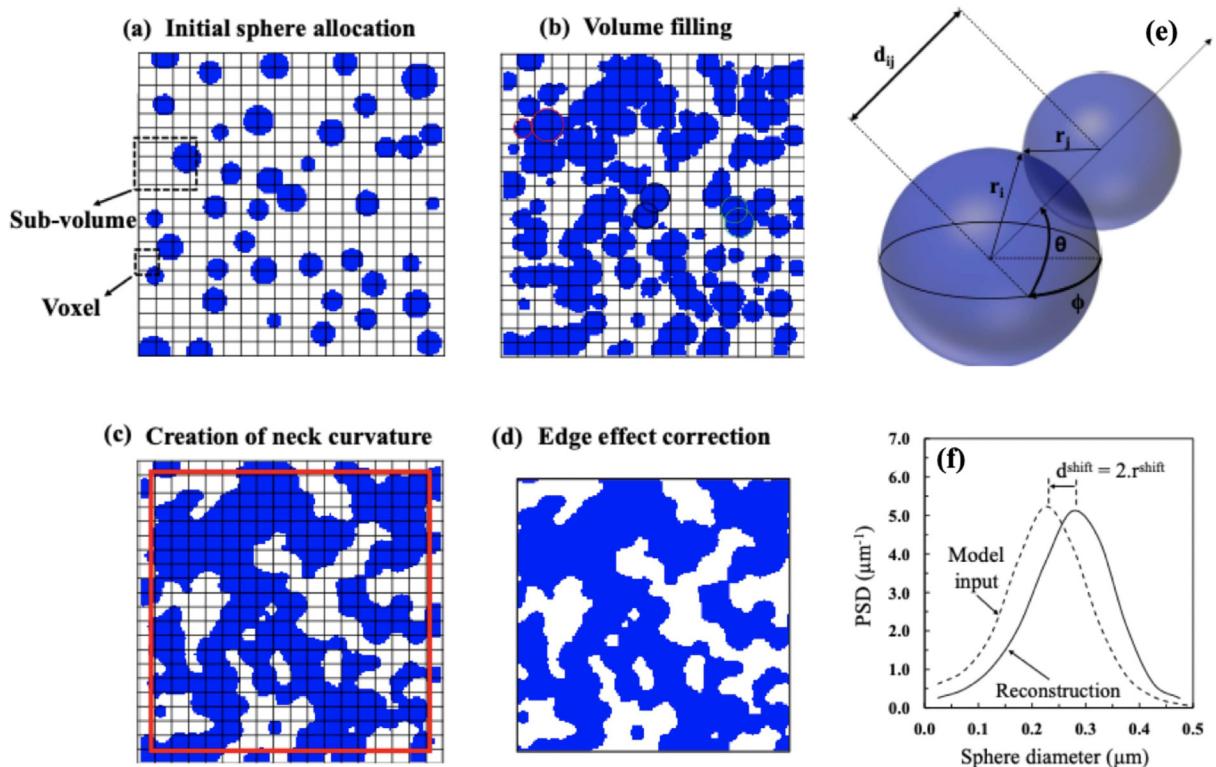


FIGURE 1 – Illustration du processus de génération d'une micro-structure biphasée issue de l'article [10].

les phénomènes d'hétérogénéité locales, il est nécessaire de calculer la coordination pour chaque sphère, ce qui correspond au nombre de sphères avec lesquelles il y a recouvrement, un nombre  $n_{coord}$  de coordination maximale étant défini.

Le processus itératif d'ajout de sphères se répète jusqu'à ce que la fraction volumique corresponde à celle que l'on souhaite atteindre.

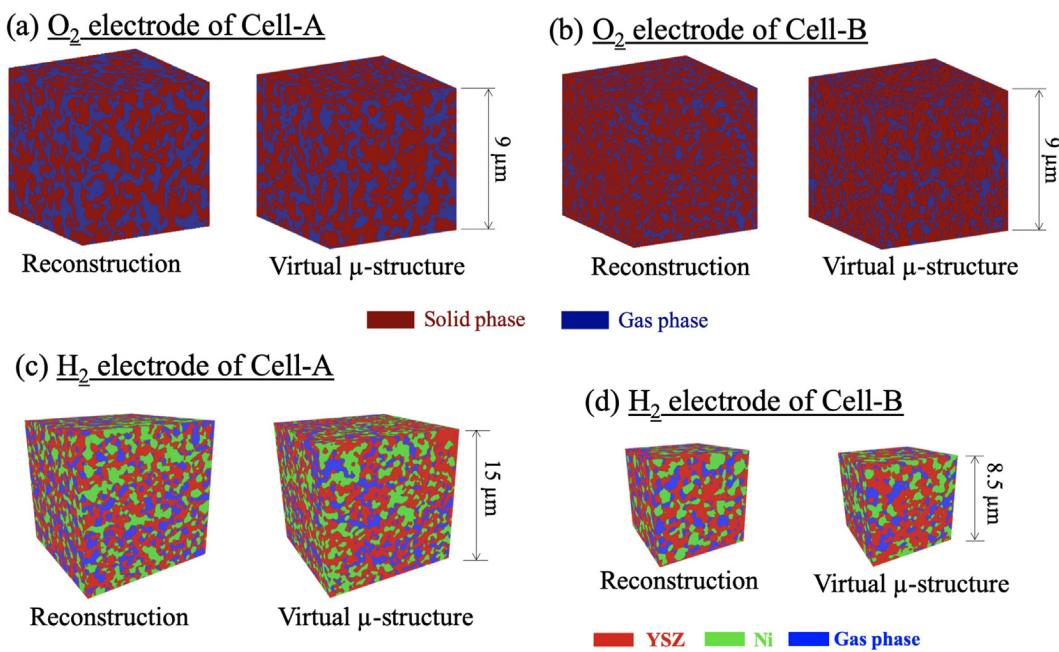
#### c) Création de goulets d'étranglement

Afin de créer des goulets d'étranglements, on applique une opération morphologique d'ouverture à la micro-structure, en utilisant une sphère comme élément structurant. Le rayon de cette sphère devient alors un nouveau paramètre d'importance de notre modèle.

Il apparaît qu'une sphère dont le rayon est de l'ordre du sixième ou du cinquième du rayon moyen des particules utilisées pour remplir l'espace (soit de  $\mu_W/6$  à  $\mu_W/5$ ) donne de bons résultats.

#### d) Correction des effets de bord

Enfin, afin d'éviter les effets de bord, il convient d'effectuer un sur-échantillonnage de l'espace avant de se restreindre à un sous-volume.



**FIGURE 2 –** Comparaison entre une micro-structure synthétique (issue du modèle) et une reconstruction (données réelles) pour les électrodes  $O_2$  (a) et (b) et  $H_2$  (c) et (d) issue de l'article [10].

## Résultats

Ce modèle peut être utilisé pour modéliser des micro-structures biphasées et triphasées (cf Figure 2). De plus, le grand nombre de paramètres autorise une grande souplesse et il est possible de prendre en compte une certaine hétérogénéité du milieu, ainsi que la présence de macro-pores.

De plus, les tableaux comparatifs avec les données réelles présents dans l'article [10] permettent de montrer d'excellents résultats concernant les indicateurs usuels, tels que la fraction volumique, tortuosité, densité surfacique, etc...

En revanche, le processus de génération d'une micro-structure peut s'avérer particulièrement lent, du fait de la nature itérative de l'algorithme, surtout lorsqu'on le compare à la rapidité du modèle présenté dans l'article [11].

### 1.1.2 Modélisation par champs Gaussiens tronqués

Dans un autre article intitulé *Stochastic geometrical modeling of solid oxide cells electrodes validated on 3D reconstructions* ([11]), H. Moussaoui nous propose un modèle de micro-structure multi-phase basé sur l'utilisation de champs Gaussiens tronqués.

#### Présentation du modèle

On considère que la micro-structure à modéliser est stationnaire, homogène et isotrope. Cette dernière est soit biphasée, avec des phases  $X$  et  $Y = \bar{X}$ , soit triphasée, avec des phases  $X$ ,  $Y$  et  $Z$ . Le modèle ne prendra pour seule entrée que les fonctions de covariance  $C_X(h)$  représentant la probabilité que deux points du domaine séparés d'une distance  $h$  appartiennent à la même phase  $X$ . Autrement dit

$$C_X(h) = \mathbb{P}(z \in X, z + h \in X), \forall z \in \Omega \quad (1.4)$$

avec  $\Omega$  le domaine 3D.

De plus, la fonction de covariance nous indique directement la valeur de la fraction volumique  $\varepsilon_X$  de la phase correspondante. En effet, on a

$$\varepsilon_X = C_X(0) \leq C_X(h) \leq 1 \quad (1.5)$$

ainsi que

$$\lim_{h \rightarrow +\infty} C_X(h) = \varepsilon_X^2 \quad (1.6)$$

dans les conditions d'isotropie et d'homogénéité considérées.

Enfin, la covariance  $C_X(h)$  est également liée à la valeur de la surface spécifique  $S_p^X$ , qui représente la surface totale entre la phase  $X$  et son complémentaire  $\bar{X}$ , normalisée par

le volume du domaine  $V_\Omega$ , de part la formule suivante

$$S_p^X = -\frac{4}{V_\Omega} \frac{dC_X}{dh} \Big|_{h=0}. \quad (1.7)$$

Le processus de génération du modèle pour une micro-structure biphasée consiste à générer un champ gaussien normal centré stationnaire  $G_X(z)$  qui possède la même corrélation spatiale que la micro-structure réelle (que l'on peut retrouver à l'aide de la fonction de covariance) et à appliquer ensuite un seuillage de sorte que l'on ait

$$X = \{z \in \Omega | G_X(z) \leq \lambda_X\} \quad (1.8)$$

avec  $\lambda_X$  le seuil correspondant à la phase  $X$ .

Il se déroule de la manière suivante.

**a) Détermination du seuil  $\lambda_X$**

Le seuil  $\lambda_X$  est lié à la fraction volumique  $\varepsilon_X$  de part la relation suivante

$$\varepsilon_X = \mathbb{P}(G_X(z) \leq \lambda_X) = \int_{\lambda_X}^{+\infty} p(x)dx \quad (1.9)$$

avec  $p(x)$  la densité de probabilité<sup>2</sup> de la loi normale centrée réduite  $\mathcal{N}(0, 1)$ .

Le seuil est alors calculé en ré-écrivant l'équation (1.9) sous la forme suivante

$$\varepsilon_X = 1 - \int_{-\infty}^{\lambda_X} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}x^2\right) dx. \quad (1.10)$$

**b) Calcul de la fonction de corrélation  $\rho_X(h)$**

Le champ Gaussien  $G_X(z)$  peut être généré à l'aide de la convolution d'un bruit Gaussien  $U(z)$  avec une fonction de poids normalisée et symétrique  $\omega(h)$  telle que

$$\sum_{\Omega} \omega^2(h) = 1 \text{ et } \omega(h) = \omega(-h), \forall h \quad (1.11)$$

en posant

$$G_X(z) = U(z) * \omega(h) = \int_{\Omega} U(z-h)\omega(h)dh. \quad (1.12)$$

La fonction de corrélation  $\rho_X(h)$  est définie de la façon suivante

$$\rho_X(h) = \text{cov}\{G_X(z), G_X(z+h)\} \quad (1.13)$$

---

<sup>2</sup>En particulier, on a alors  $p(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}x^2\right)$ .

et est liée à la fonction de poids  $\omega(h)$  de part la relation suivante

$$(\omega * \omega)(h) = \rho_X(h). \quad (1.14)$$

Elle peut alors être calculée à l'aide de la formule ci-dessous, démontrée en annexe de l'article [11].

$$C_X(h) - \varepsilon_X = \frac{1}{2\pi} \int_1^{\rho_X(h)} \frac{1}{\sqrt{1-r^2}} \exp\left(\frac{-\lambda_X^2}{1+r}\right) dr \quad (1.15)$$

### c) Génération du champ Gaussien $G_X(z)$

La génération du champ Gaussien  $G_X(z)$  est ensuite assurée par la combinaison des équations (1.12) et (1.14).

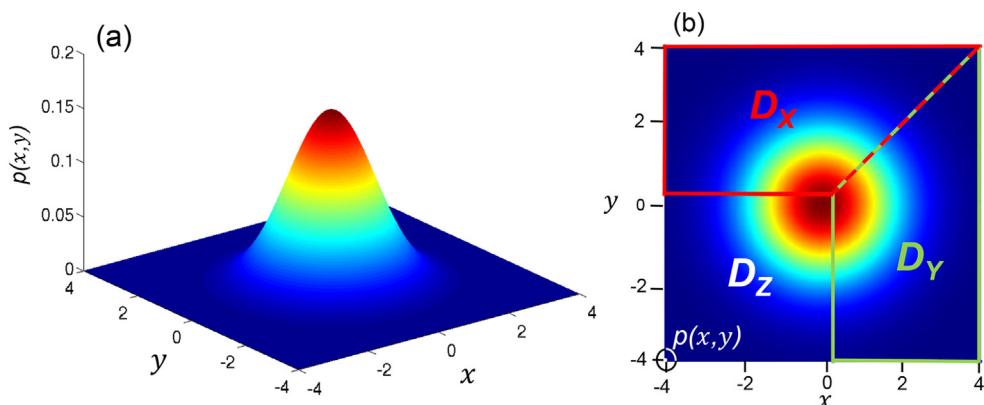
### d) Seuillage du champ Gaussien $G_X(z)$ par $\lambda_X$

Le seuillage de  $G_X(z)$  par la valeur  $\lambda_X$  permet d'obtenir une micro-structure partageant les mêmes caractéristiques que la micro-structure réelle.

Ce processus peut alors être étendu à des structures triphasées, notamment en ce qui concerne la phase de seuillage (cf. figure 3), ce qui permet en particulier de contrôler la surface spécifique entre les phases (*ie* la surface spécifique entre  $X$  et  $Y$  ou entre  $X$  et  $Z$  par exemple, plutôt qu'entre  $X$  et  $\bar{X}$  tout entier).

## Résultats

Du fait du mode de génération même du modèle, les résultats sont particulièrement bons en ce qui concerne les fractions volumiques, les surfaces spécifiques, mais égale-



**FIGURE 3 –** Illustration d'une distribution normale et de la définition de seuils pour une électrode à trois phases issue de l'article [11]. Le champ Gaussien suit une loi normale multivariée avec une densité de probabilité  $p(x,y)$  (a) et est seuillée avec une partition du domaine représentée en (b).

ment la tortuosité ou encore la densité de points triples.

Le modèle montre quelques limites en ce qui concerne la constrictivité  $\beta$  ainsi que le facteur de structure M-factor (indicateurs qui seront définis plus avant dans la suite de ce rapport).

De plus, l'utilisation de transformée de Fourier dans le processus de génération de la micro-structure synthétique permet de rendre ce dernier particulièrement rapide, et l'article indique que l'on peut générer à l'aide de champs Gaussiens une micro-structure en quelques secondes quand la même prendrait plusieurs heures si l'on utilisait des sphères solides comme exposé précédemment.

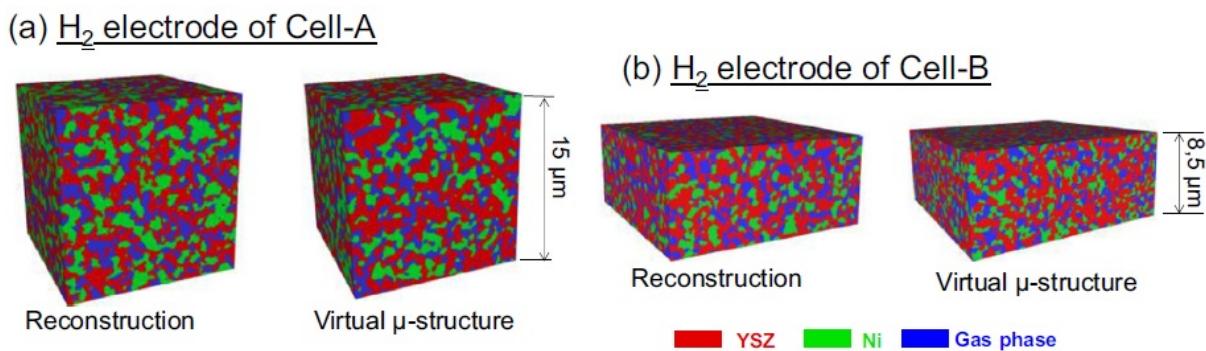


FIGURE 4 – Illustrations de micro-structures synthétiques (virtuelles) comparées aux micro-structures réelles issues de l'article [11].

Enfin, le contrôle de la partition du domaine lors de l'étape de seuillage, comme illustré au point (b) de la figure 3, permet notamment d'introduire de l'hétérogénéité, tel qu'un gradient de phase, ou encore d'isoler complètement deux phases l'une de l'autre.

### 1.1.3 Modélisation par champs de $\chi^2$ tronqués

Suite à l'article de H. Moussaoui [11] sur les champs gaussiens tronqués, Benedikt Prifling propose dans son article *Stochastic 3D microstructure modeling of anodes in lithium-ion batteries with a particular focus on local heterogeneity* [14] d'utiliser les champs de  $\chi^2$  tronqués afin de modéliser les micro-structures des batteries ion-lithium.

#### Premier modèle

La démarche est sensiblement similaire à celle exposée ci-dessus pour les champs Gaussiens. Une phase  $X$  est alors identifiée par

$$X = \{z \in \Omega | K_X(z) \geq \lambda_X\} \quad (1.16)$$

où  $\lambda_X$  est toujours un seuil associé à la phase  $X$ , et  $K_X$  un champ aléatoire de  $\chi^2$  à  $n$

degrés de liberté ( $n \geq 1$ ) défini comme suit.

$$K_X(z) = \sum_{i=1}^n G_i(z), \quad z \in \mathbb{R}^3 \quad (1.17)$$

avec  $\{G_1(z)\}, \dots, \{G_n(z)\}$  des champs Gaussiens normalisés indépendants de même covariance  $k_G : \mathbb{R} \rightarrow [-1; 1]$ .

### Second modèle

Le modèle à base de champs de  $\chi^2$  tronqués ne permettant visiblement pas de prendre en compte toutes les spécificités de la micro-structure des anodes, malgré la possibilité de jouer sur les paramètres que sont  $n$  et  $k_X$ , l'auteur propose d'identifier les phases de la manière suivante.

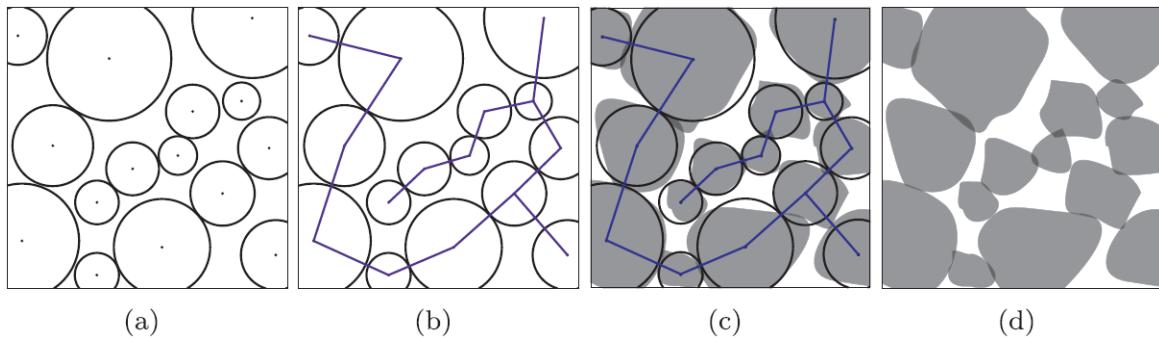
$$X = \{z \in \Omega | K_X(z) \geq \lambda_X + H(z)\} \quad (1.18)$$

où  $\{H(z), z \in \mathbb{R}^3\}$  est un champ Gaussien normalisé avec une fonction de covariance  $k_H$ .

Cette extension du modèle permet de mieux prendre en compte la tortuosité de la micro-structure, de même que certaines hétérogénéités.

#### 1.1.4 Modélisation par systèmes de particules et champs Gaussiens

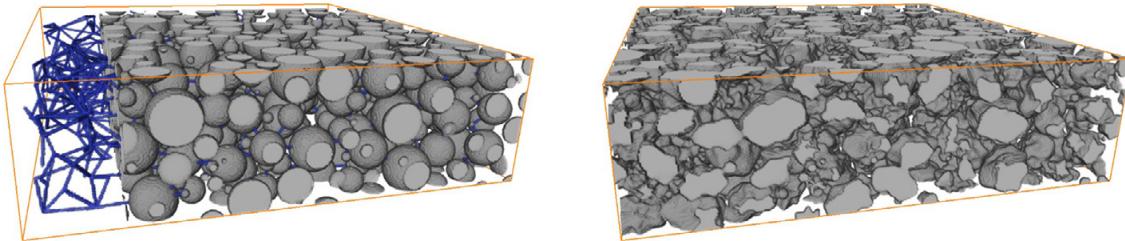
Une modélisation de micro-structures pour les batteries ion-lithium par génération de sphères dures combinée à l'utilisation de champs Gaussiens est proposée par Daniel Westhoff dans l'article *Generation of virtual lithium-ion battery electrode microstructures based on spatial stochastic modeling* [18].



**FIGURE 5 –** Illustrations du processus de génération de micro-structures virtuelles issues de l'article [18].

L'idée est de générer un champ de sphères dures 5 (a), puis de générer l'arbre de poids minimal, graphe dont les sommets sont les centres de ces sphères et dont la somme des longueurs des arêtes réalise le minimum de distance 5 (b). Ensuite, on génère pour chaque sphère une particule de taille équivalente en utilisant un champ Gaussien (en

gris), en s'assurant que la connectivité entre deux sphères est conservée par les particules correspondantes 5 (c). Enfin, on ne conserve que les particules connectées (*i.e.* on ne s'intéresse plus aux sphères et au graphe), qui correspondent alors à la micro-structure, illustrée par la figure 6.



**FIGURE 6** – Illustrations issue de l'article [18] d'une micro-structure générée par la méthode illustrée par la figure 5. On peut voir le champ de sphères dures connectées (à gauche), ainsi que le squelette reliant les centres de ces sphères, et la structure finale réalisée par les champs Gaussiens sur les sphères (à droite).

### 1.1.5 Modélisation par $\beta$ -squelettes

Une autre façon de modéliser des micro-structures triphasées, que nous aborderons plus en détails dans la section 2.2 de ce rapport, est proposée par Matthias Neumann [12] dans un article intitulé *Stochastic 3D modeling of complex three-phase microstructures in SOFC-electrodes with completely connected phases*.

Il s'agit de générer trois graphes aléatoires et d'associer chaque points de l'espace à une phase, en fonction du graphe avec lequel il réalise le minimum de distance. Ces graphes ne sont autres que des  $\beta$ -squelettes, une notion précisée dans l'article *A Framework For Computational Morphology* [8], et sont donc chacun régis par deux paramètres, l'un contrôlant le nombre moyen de sommets, et l'autre le nombre d'arêtes.

Ce modèle semble obtenir de bonnes performances, d'autant plus qu'il a le mérite de proposer des formules analytiques pour certains indicateurs comme la fraction volumique, ainsi que la surface spécifique de chaque phase, tant que les processus de points qui régissent les sommets de chacun des graphes sont des processus de Poisson, c'est-à-dire que le nombre de points suit une loi de Poisson et que la répartition spatiale est uniforme.

Malheureusement, il semble que nous ne pourrons pas utiliser ces formules telles quelles car il est probable qu'il nous faille faire usage d'une répartition spatiale non-uniforme en ce qui concerne les sommets du graphe correspondant à la phase métallique, comme nous le verrons plus tard.

## 1.2 Correspondance de graphes

### 1.2.1 Fast Approximate Quadratic Programming for Graph Matching

Afin de prendre en compte la dimension temporelle de notre problème, et privilégiant la piste des  $\beta$ -squelettes afin de modéliser nos micro-structures, il nous est paru naturel de nous pencher sur les techniques de *graph matching*, et notamment celle proposée par l'article *Fast Approximate Quadratic Programming for Large (Brain) Graph Matching* [17], qui décrit comme il est possible de ramener le problème de correspondance entre deux graphes à celui du problème d'affectation quadratique (QAP en anglais).

Il s'agit en particulier de trouver une permutation de l'étiquetage des sommets du graphe initial afin qu'il corresponde le mieux possible au graphe final, tout en prenant en compte les connexions entre les sommets à travers les matrices d'adjacence de chacun des graphes.

Le problème d'affectation quadratique appartenant à la classe NP-difficile, il est de fait illusoire d'espérer pouvoir trouver à coup sûr une solution exacte en un temps raisonnable. En revanche, l'article susmentionné propose de plonger le problème dans un espace plus grand afin de le résoudre à l'aide d'une descente de gradient, puis de projeter la solution trouvée sur l'espace de départ. Ainsi, la solution peut ne pas être optimale, mais le temps de calcul s'en trouve fortement diminué.

### 1.2.2 Correspondance de graphes avec attributs

Dans son article intitulé *A Quotient Space Formulation for Generative Statistical Analysis of Graphical Data* [7], Xiaoyang Guo étend le travail réalisé dans un précédent article [6] et propose un cadre au sein duquel la correspondance entre graphes permet une interpolation fluide et naturelle.

Il propose plusieurs algorithmes afin d'obtenir cette correspondance. Le premier consiste à se ramener au problème d'affectation afin d'obtenir une matrice de permutation qui permettra de mettre en correspondance les sommets de chacun des graphes en fonction de leur connexité exprimée par chacune des matrices d'adjacences. En revanche, cet algorithme est présenté comme peu adapté aux graphes de grandes tailles, ce qui le disqualifie instantanément pour notre application.

Le second algorithme n'est autre que celui présenté ci-dessus [17]. Néanmoins, l'auteur propose dans les deux cas de prendre en compte des attributs que l'on peut affecter aux sommets lors de la mise en correspondance de chacun des graphes. Dans notre cas, ces attributs ne seront autres que les positions respectives des sommets du graphes dans  $\mathbb{R}^3$ , ce qui signifie qu'en plus de la matrice d'adjacence de chacun des graphes, l'algorithme prendra également une matrice de distance en entrée. Un paramètre permettra

alors de contrôler l'influence de la connexité et celle des positions des sommets lors de la correspondance entre les deux graphes.

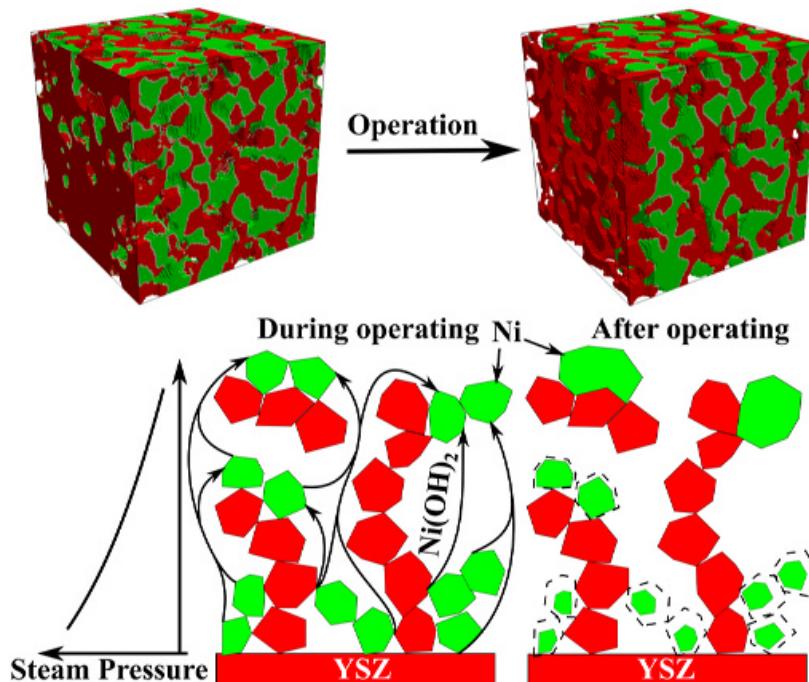
Enfin, il faut noter qu'il n'est pas nécessaire que les deux graphes à mettre en correspondance aient le même nombre de sommets. L'article propose ainsi d'introduire la notion de sommets nuls pour pallier ce problème. Dans ce cas, on parlera d'*inexact graph matching*.

### 1.3 Évolution temporelle de micro-structures

Un article de Yinkai Lei [9] propose une méthode basée sur le modèle de Kim-Kim-Suzuki (KKS) [15] afin de modéliser l'évolution de la micro-structure d'une cellule oxyde-solide en tenant compte de la diffusion du  $\text{Ni(OH)}_2$  à travers la phase poreuse.

Le modèle KKS permet de décrire la croissance ou décroissance de particules solides dans un liquide. On assimile alors la phase Nickel à des particules solides évoluant dans le  $\text{Ni(OH)}_2$ , assimilé quant à lui à un liquide.

Les résultats obtenus, lorsqu'ils sont comparés aux données réelles, sont extrêmement convaincants, bien que l'ajustement du modèle soit assez coûteux en temps de calcul.



**FIGURE 7 –** Illustrations issue de l'article [9] montrant l'évolution de la phase Nickel avec un phénomène de coalescence couplé à une redistribution spatiale de cette même phase.

Néanmoins, cette approche diffère grandement de celle que l'on se propose d'adopter en ce sens qu'elle se concentre plutôt sur le point de vue physico-chimique, tant au niveau du modèle que de la validation des résultats, quand nous proposons une approche orientée géométrie stochastique et morphologie.

## 1.4 Synthèse

### 1.4.1 Avantages, inconvénients et limites

Les méthodes présentées ci-dessus ont toutes des avantages indéniables, mais aussi certaines limites. Par exemple, les modèles de micro-structures à base de champs Gaussiens ou de  $\chi_2$  permettent d'obtenir d'excellents résultats sur de nombreux indicateurs et sont extrêmement rapides à mettre en œuvre, étant donné que la covariance est l'unique critère à prendre en compte lors de l'ajustement du modèle aux données réelles. Les surfaces spécifiques sont également obtenues avec une très grande précision, et il est possible d'utiliser des gradients de phase ou des phénomènes d'enrobage.

En revanche, il sera plus difficile, voire impossible, de prendre en compte des phénomènes hétérogènes tels que la coalescence d'une des phases, sa migration spatiale au fil du temps, ou encore d'inclure la présence de macro-pores.

Les modèles à base de sphères dures permettent quant à eux de modéliser des micro-structures plus complexes peut-être plus facilement, tout du moins en ce qui concerne la présence de ces macro-pores et la coalescence d'une des phases. En revanche, la génération de ces micro-structures et leur ajustement aux données réelles peut prendre un temps considérable. Néanmoins, il est peut-être plus simple d'y intégrer une dimension temporelle, comme le montre [9].

Enfin, la modélisation de micro-structures à l'aide de graphes aléatoires ou  $\beta$ -squelettes semble proposer un bon compromis entre l'extrême rapidité et la précision des modèles par champs Gaussiens, et la flexibilité des modèles de sphères dures, qui se révèlent bien plus lents à ajuster aux données. Les graphes aléatoires permettent de proposer des modèles entièrement paramétriques et très flexibles, comme nous le verrons par la suite, et il semble tout naturel de leur adjoindre une composante temporelle à l'aide des techniques de *Graph Matching*.

### 1.4.2 Notre contribution

Pour toutes ces raisons, nous proposons d'adopter une approche originale, qui consistera à utiliser des  $\beta$ -squelettes afin de générer un modèle de micro-structure, et d'utiliser les techniques de *Graph Matching* afin d'y ajouter une dimension temporelle.

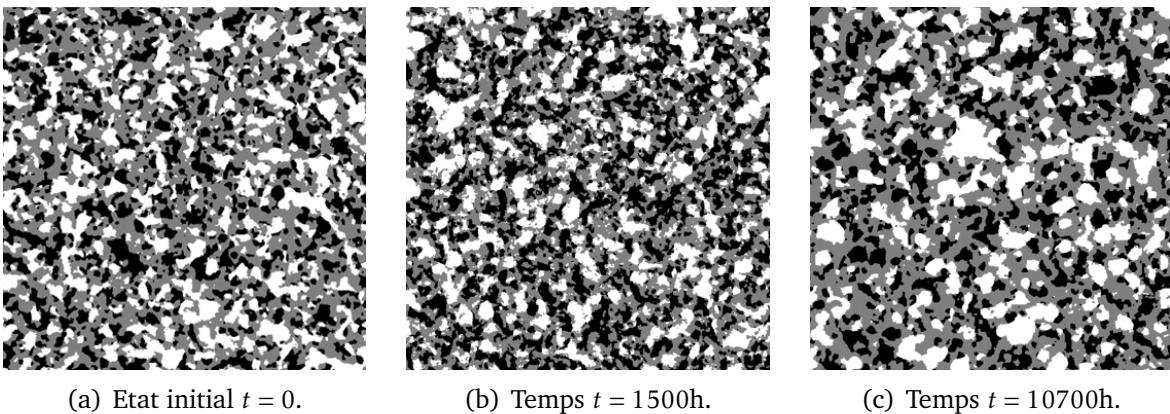
La modélisation de l'évolution d'une micro-structure ayant déjà été proposée à l'aide d'un modèle s'apparentant plutôt à ceux de type « sphères dures », et adoptant un point de vue plutôt physico-chimique, notre démarche est originale en ce sens que l'on utilisera des techniques et un point de vue radicalement différents.

En résumé, notre principale contribution consistera à montrer qu'il est possible de modéliser des micro-structures hétérogènes à l'aide de  $\beta$ -squelettes, et d'ajuster correctement le modèle aux données réelles, et, dans un second temps, qu'il est également possible de modéliser l'évolution temporelle de ces mêmes micro-structures par interpolation entre deux états.

## 2 Définition du modèle

### 2.1 Idée générale

L'objectif de notre stage est double. Il s'agit en effet non-seulement de concevoir un modèle pour les cellules oxyde solide, mais également d'y insérer une dimension temporelle. En effet, lors de son utilisation, la cellule va chauffer. Cela entraîne une dégradation de la micro-structure et de la phase céramique (cf. figure 8), mais également une coalescence de la phase métallique, ayant pour conséquence directe une diminution de l'efficacité, la connexité de la phase Nickel n'étant alors plus assurée.



**FIGURE 8** – Noir : Porosité - Gris : Zircone - Blanc : Nickel. On observe une coalescence de la phase métallique (Nickel) au fur et à mesure de l'utilisation de la cellule.

Par conséquent, il nous a semblé naturel de concevoir un modèle à base de  $\beta$ -squelettes, à savoir des graphes non-orientés dont nous définirons les propriétés plus avant dans cette section.

En effet, il existe certaines techniques permettant de faire correspondre deux graphes, telles que l'*inexact graph matching*, ce qui devrait rendre possible la prise en compte de cette dimension temporelle, en faisant évoluer l'état de nos graphes, et donc, notre micro-structure, en fonction du temps.

Ainsi, il s'agit dans un premier temps d'être capable de modéliser correctement au moins deux des états d'utilisation de la cellule qui nous sont proposés, tout en s'assurant que ces derniers correspondent à la réalité des données, puis d'être capable de faire correspondre deux graphes de manière continue.

Enfin, nous devrions être en mesure d'appliquer cette correspondance entre deux graphes à notre modèle de micro-structure, afin de prendre en compte son évolution au fil du temps.

## 2.2 Définition

Un  $\beta$ -squelette est un graphe non-orienté dont les arêtes sont soumises à certaines contraintes. Il existe plusieurs définitions et plusieurs façons de formaliser ces contraintes, équivalentes dans l'esprit, mais pas du point de vue mathématique.

Nous nous proposons dans toute la suite d'adopter la définition exposée dans [8] et reprise dans l'article de Matthias Neumann [12] intitulé *Stochastic 3D modeling of complex three-phase microstructures in SOFC-electrodes with completely connected phases* qui explique comment les  $\beta$ -squelettes permettent de modéliser des micro-structures triphasées de cellules oxyde-solide complètement connectées.

Soit  $d \in \mathbb{N}^*$ ,  $\varphi$  un ensemble de points de  $\mathbb{R}^3$  et un réel  $b \leq 1$ . On définit alors un  $\beta$ -squelette comme le graphe non-orienté noté  $G = (\varphi, E_b)$ , de sommets  $\varphi$  et dont l'ensemble des arrêtes est  $E_b$ . Cet ensemble  $E_b$  est construit de la façon suivante.

Pour tout couple de sommets  $(x, y) \in \varphi^2$ , on pose

$$m_{x,y}^{(1)} = \frac{b}{2}x + \left(1 - \frac{b}{2}\right)y \quad \text{et} \quad m_{x,y}^{(2)} = \frac{b}{2}y + \left(1 - \frac{b}{2}\right)x. \quad (2.1)$$

On définit ensuite une zone critique  $A_b(x, y)$  comme suit.

$$A_b(x, y) = B\left(m_{x,y}^{(1)}, |m_{x,y}^{(1)} - y|\right) \cap B\left(m_{x,y}^{(2)}, |m_{x,y}^{(2)} - x|\right) \quad (2.2)$$

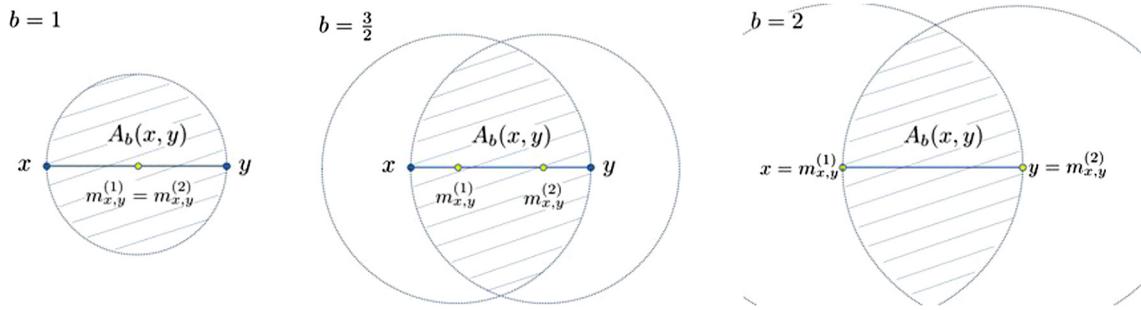
avec  $B(x, r)$  la boule ouverte de centre  $x$  et de rayon  $r$ .

Ainsi, l'ensemble des arêtes du graphe  $E_b$  est défini de la manière suivante.

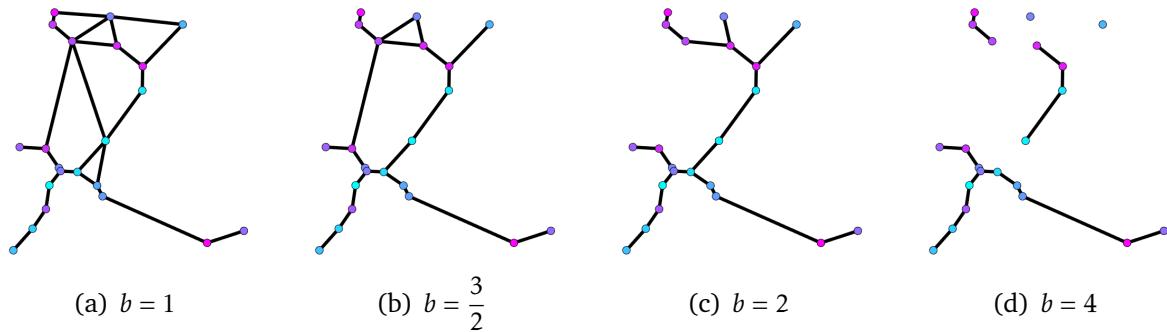
$$E_b = \{(x, y) \in \varphi^2 \mid (\varphi \setminus \{x, y\}) \cap A_b(x, y) = \emptyset\}. \quad (2.3)$$

En particulier, cela signifie qu'il existe une arête entre deux sommets  $x$  et  $y$  du graphe si et seulement s'il n'existe aucun autre sommet  $z \in \varphi \setminus \{x, y\}$  de  $G$  tel que  $z \in A_b(x, y)$  ou, autrement dit, qu'il n'existe aucun sommet de  $\varphi$  distinct de  $x$  et  $y$  dans la zone critique  $A_b(x, y)$ .

La figure 9 issue de [12] permet de visualiser la zone critique entre deux sommets du graphe pour différentes valeurs du paramètre  $b$ . Il est d'ailleurs intéressant de noter que pour  $b \leq 2$ , le graphe  $G(\varphi, E_b)$  est complètement connecté, phénomène illustré par la figure 10.



**FIGURE 9** – Illustration issue de [12] permettant de visualiser la zone critique  $A(x, y)$  pour différentes valeurs du paramètre  $b$ , à savoir, de gauche à droite,  $b = 1$ ;  $b = 3/2$  et  $b = 2$ .



**FIGURE 10** – Illustration de l'influence du paramètre  $b$  sur l'ensemble des arêtes  $E_b$  du graphe  $G(\varphi, E_b)$ . Tant que  $b \leq 2$ , le graphe est bien complètement connecté, ce qui n'est plus nécessairement le cas dès lors que  $b > 2$ .

Par ailleurs, pour  $b \leq 1$ , le graphe  $G(\varphi, E_b)$  est un sous-graphe de la triangulation de Delaunay [8], ce qui permet d'obtenir une complexité en  $\mathcal{O}(n \ln(n))$ .

Le cas particulier où  $b = 1$  permet d'obtenir exactement le graphe de Gabriel, qui impose qu'il existe une arête entre deux sommets  $x$  et  $y$  si et seulement s'il n'existe aucun autre sommet à l'intérieur du disque (respectivement de la boule) de diamètre  $|x - y|$  et de centre  $(x + y)/2$ .

Quant au cas où  $b = 2$ , il s'agit d'un autre cas particulier, puisque le graphe coïncide alors avec celui des voisinages relatifs (*Relative neighborhood graph*) qui connecte deux sommets  $x$  et  $y$  si et seulement s'il n'existe aucun autre sommet qui ne soit à la fois plus proche de  $x$  et de  $y$  qu'ils ne le sont l'un de l'autre. Autrement dit, pour tout couple  $(x, y) \in \varphi$  et pour  $z \in \varphi \setminus \{x, y\}$ , il existe une arête entre  $x$  et  $y$  si et seulement si l'on a

$$(|x - z| > |x - y|) \wedge (|y - z| > |x - y|) \quad (2.4)$$

avec  $\wedge$  l'opérateur booléen *ET*.

Enfin, tant que  $b \leq 2$ , le graphe  $G(\varphi, E_b)$  contient l'arbre couvrant de poids minimal, qui permet de connecter l'ensemble des sommets en minimisant la distance totale de la longueur des arêtes, ce dernier étant un sous graphe du graphe des voisnages relatifs, lui-même sous graphe du graphe de Gabriel, lui aussi sous-graphe de la triangulation de Delaunay. Cela permet d'assurer la connexité du graphe pour tout  $b \leq 2$ .

Dans toute la suite, on supposera  $b \geq 1$ , ce qui nous permettra de générer rapidement le graphe correspondant en nous basant sur une première triangulation de Delaunay.

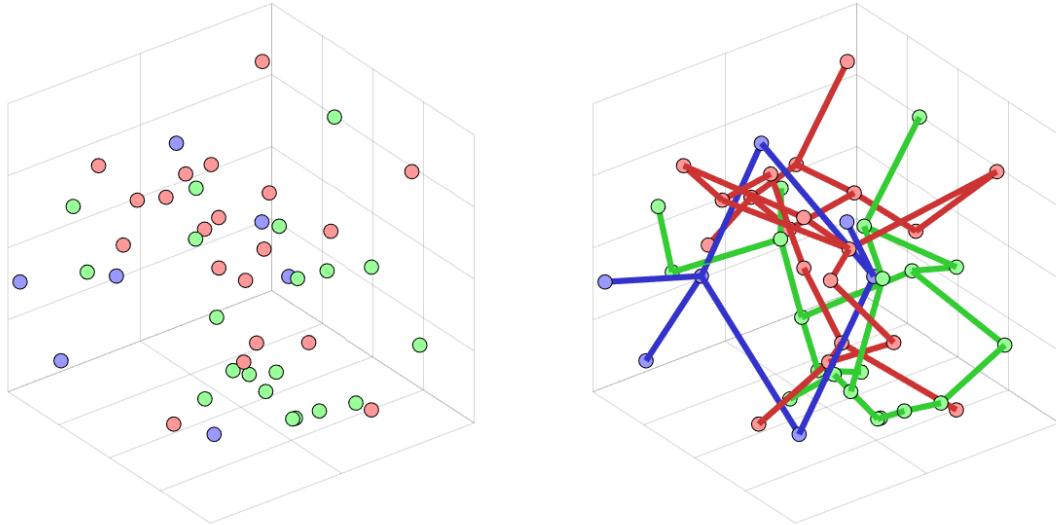
### 2.3 Modélisation d'une micro-structure

L'article [12] propose une méthode (cf figure 11) pour modéliser des micro-structures triphasées à l'aide de  $\beta$ -squelettes que nous allons détailler ci-après.

On note  $X_1, X_2$  et  $X_3$  trois processus de Poisson [13] homogènes et indépendants d'intensité respectives  $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3 > 0$ .

Soit  $(b_1, b_2, b_3) \in [1; +\infty[^3$ . On peut alors définir les graphes  $G_i = G_{b_i}(X_i)_{i \in \{1, 2, 3\}}$  qui ne sont autres que des  $\beta$ -squelettes de paramètres  $b_i$  et de sommets respectifs  $X_i$ .

Les trois phases sont alors définies par les ensembles aléatoires  $\Xi_i, i = 1, 2, 3$ , de sorte qu'un point de l'espace appartienne à la phase correspondant au graphe  $G_i$  dont il est



**FIGURE 11** – Première étape du processus de modélisation d'une micro-structure triphasée. On génère dans un premier temps trois ensembles de points  $X_i, i \in \{1, 2, 3\}$  (à gauche) puis trois  $\beta$ -squelettes  $G_i, i = \{1, 2, 3\}$  (à droite). Un point de l'espace appartiendra à la phase  $i$  correspondant au graphe  $G_i$  dont il est le plus proche.

le plus proche. Autrement dit, on a

$$x \in \Xi_i \Leftrightarrow d(x, G_i) \leq \min_{j \in \{1, 2, 3\}} d(x, G_j) \quad (2.5)$$

avec

$$d(x, G) = \min_{e \in E} \min_{y \in e} |x - y| \quad (2.6)$$

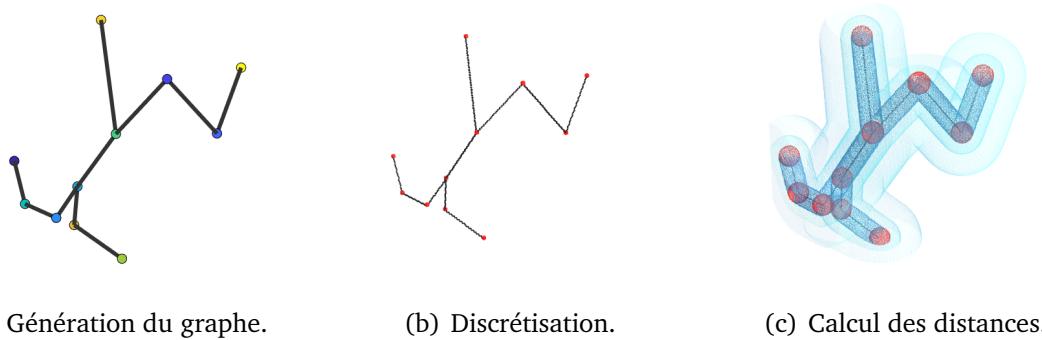
qui est la distance Euclidienne de l'élément  $x$  du domaine au graphe  $G = (X, E)$ ,  $e$  étant un élément de l'ensemble des arêtes  $E$  du graphe  $G$ .

En particulier, on notera que par définition, l'ensemble aléatoire  $\Xi_i$  contient l'union de toutes les arêtes du graphe  $G_i$  dès lors que l'on a  $1 \leq b_i \leq 2$ . Puisque, sous cette condition, le graphe  $G_i$  est complètement connecté, c'est également le cas de l'ensemble aléatoire  $\Xi_i$ , et ce, pour tout  $i \in \{1, 2, 3\}$ .

Concrètement (cf figure 12), après avoir généré chacun des graphes  $G_i$  et les avoir discrétisé, on calcule la carte de distance correspondante [4]. Enfin, il suffit de déterminer en chaque point de l'espace le graphe qui réalise le minimum de distance et d'y associer la phase  $i$  correspondante.

On dispose ainsi d'un premier modèle à 6 paramètres relativement flexible, permettant de générer des structures diverses (cf figure 13). Comme on l'imagine aisément, la fraction volumique  $\varepsilon_i$  (*ie* le volume d'une phase normalisé par le volume total du domaine) dépend directement du nombre de points générés par le processus de Poisson et donc des trois paramètres  $\lambda_i$ .

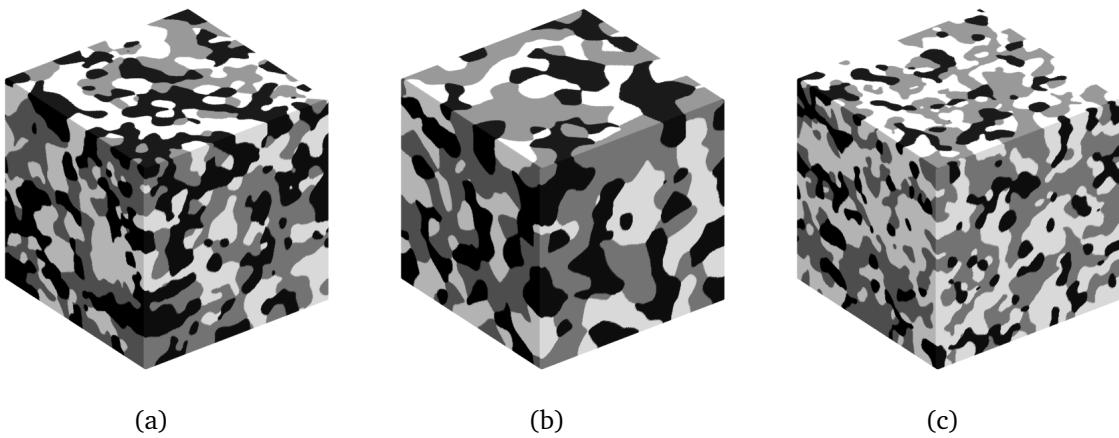
En revanche, il peut être intéressant de noter que les paramètres  $b_i$  vont avoir une influence directe sur le nombre d'arêtes, et donc la longueur totale, du graphe  $G_i$ , ce qui



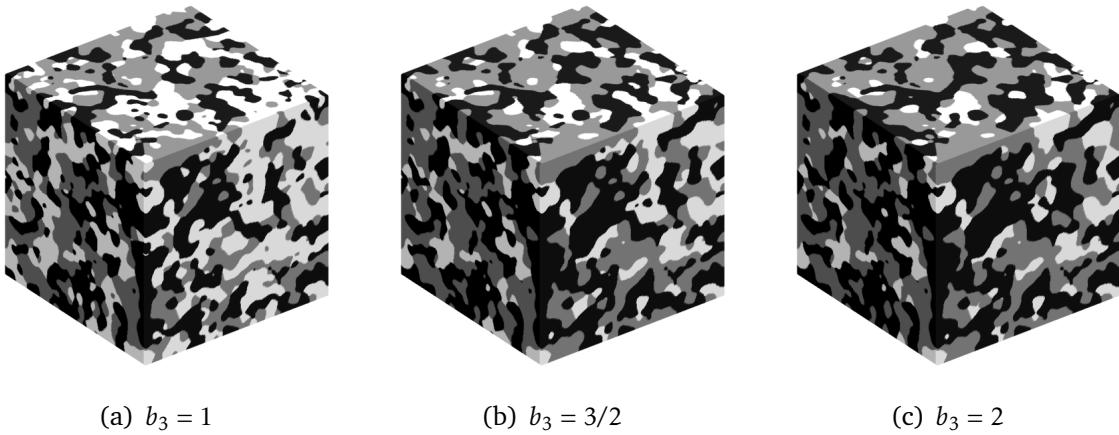
**FIGURE 12 –** Mode d'utilisation d'un  $\beta$ -squelette afin de générer une micro-structure. Après avoir généré le graphe  $G_i$  de paramètre  $b_i$  (a), on discrétise la structure de ce dernier (b). Enfin, on calcule pour chaque point du domaine la distance au graphe  $G_i$  (c).

aura par conséquent un impact direct sur cette même fraction volumique  $\varepsilon_i$ .

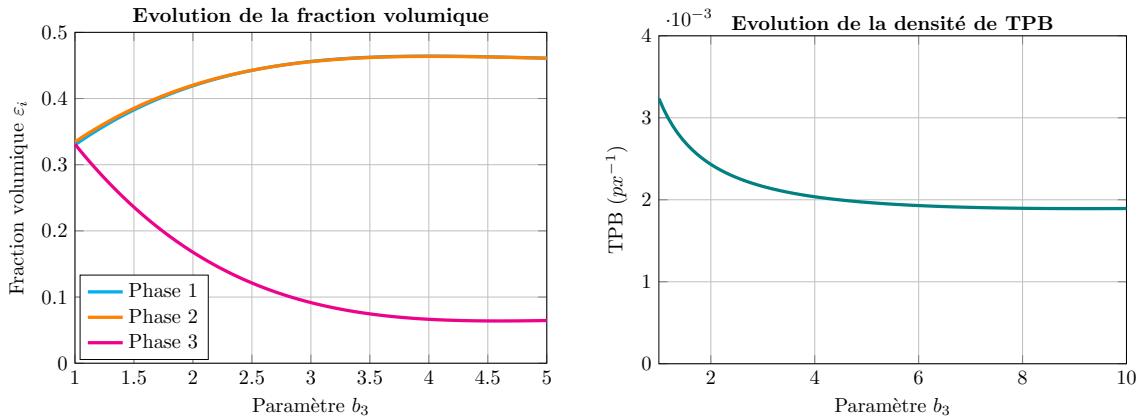
Cette influence du paramètres  $b$  sur la micro-structure est illustré par la figure 14, où l'on fait varier  $b_3$  de 1 à 2, la phase correspondante étant donc toujours entièrement connectée. On remarque cependant une très forte diminution de la fraction volumique  $\varepsilon_3$  correspondante au profit des deux autres. Néanmoins, il est important de noter que l'influence de  $b$  sur la fraction volumique diminue sensiblement dès lors que l'on dépasse un certain seuil, comme l'illustre la figure 15 où cette dernière n'évolue pratiquement plus à partir de  $b_3 \geq 5$ . Il est toutefois important de noter que cette valeur



**FIGURE 13 –** Exemple de plusieurs réalisations de micro-structures triphasées sur un domaine  $V = [0; 300]^3$  et avec les paramètres  $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 = 1.10^{-5}$  et  $b_1 = b_2 = b_3 = 1$  (a),  $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 = 1.10^{-5}$  et  $b_1 = b_2 = b_3 = 2$  (b) et  $\lambda_1 = 3.10^{-5}$ ,  $\lambda_2 = \lambda_3 = 2.10^{-5}$  et  $b_1 = 2$ ,  $b_2 = b_3 = 1$  (c).



**FIGURE 14 –** Illustration de l'influence du paramètre  $b$  sur l'une des phases de la micro-structure triphasée sur un domaine  $V = [0; 300]^3$  avec les paramètres  $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 = 2.10^{-5}$  et  $b_1 = b_2 = 1$ . Le paramètre  $b_3$ , quant à lui, varie de 1 à 2. La phase  $\Xi_3$  est colorée en blanc.



**FIGURE 15** – Évolution de la fraction volumique (gauche) de chacune des phases, ainsi que de la densité de points triples (droite) en fonction du paramètre  $b_3$ . Les données sont obtenues en calculant la moyenne de chacun des indicateurs sur un ensemble de 16 simulations par mesure sur un volume  $V = [0; 300]^3$  avec les paramètres de la figure 14.

dépend des deux autres paramètres  $b_1$  et  $b_2$ , ainsi que des trois densités des processus de point  $\lambda_i$ .

Enfin, la même figure 15 permet d'illustrer l'influence de ce même paramètre  $b$  sur la densité de TPB<sup>3</sup>. Il apparaît encore une fois l'apparition d'un seuil au-delà duquel l'influence de  $b_3$  diminue fortement. Néanmoins, ce résultat est naturel, étant donné que la densité de TPB dépend fortement des différentes fractions volumiques, et que si  $\varepsilon_3$  diminue, la densité de TPB aura de fait tendance à diminuer.

## 2.4 Introduction de paramètres supplémentaires

### 2.4.1 Distance paramétrique

Le même article [12] nous propose une généralisation du modèle de part l'ajout de quatre autres paramètres.

Tout d'abord, afin de mieux prendre en compte l'apparition de goulets d'étranglement et de pouvoir contrôler l'accumulation ou non d'une phase autour des sommets du graphe correspondant, on utilise une distance paramétrique, non-Euclidienne. On ajoute ainsi un paramètre  $\gamma_i$  pour chaque phase  $\Xi_i$ .

Pour trois réels  $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3 \geq 1$ , et  $G_1, G_2, G_3$  les trois graphes correspondants à chacune des trois phases, on définit chacune de ces trois mêmes phases par les ensembles aléa-

<sup>3</sup>La densité de TPB (ou *Triple Point Boundary*) désigne la densité de points triples, c'est-à-dire à l'interface des trois différentes phases, normalisée par le volume du domaine.

toires  $\Xi_i$ ,  $i = \{1, 2, 3\}$  de la façon suivante.

$$x \in \Xi_i \Leftrightarrow d'_{\gamma_i}(x, G_i) \leq \min_{j \in \{1, 2, 3\}} d'_{\gamma_i}(x, G_j) \quad (2.7)$$

avec

$$d'_{\gamma_i}(x, G_i) = \min(\gamma_i d(x, G_i), d(x, X_i)) \quad (2.8)$$

et avec

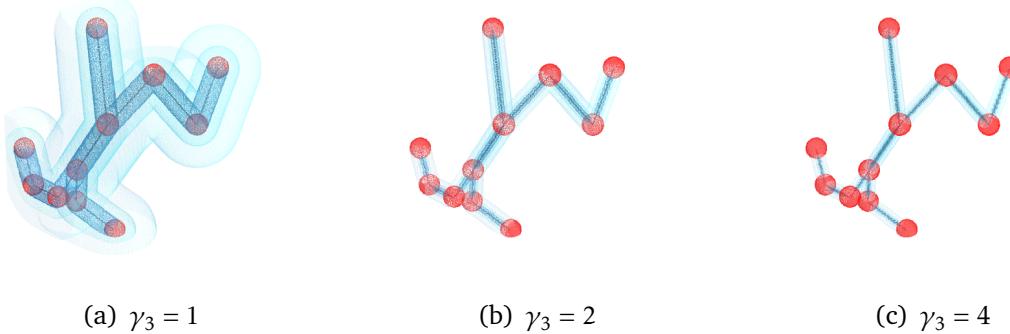
$$d(x, X_i) = \min_{y \in X_i} |x - y| \quad (2.9)$$

la distance Euclidienne entre  $x$  et l'ensemble de points  $X_i$  (qui est aussi l'ensemble des sommets du graphe  $G_i$ ).

Il convient de remarquer que  $d'_{\gamma_i}$  est bien une distance, et qu'elle coïncide avec la distance Euclidienne pour  $\gamma_i = 1$ . De plus, les variations de  $\gamma$  n'ont pas d'influence sur la connectivité des phases correspondantes.

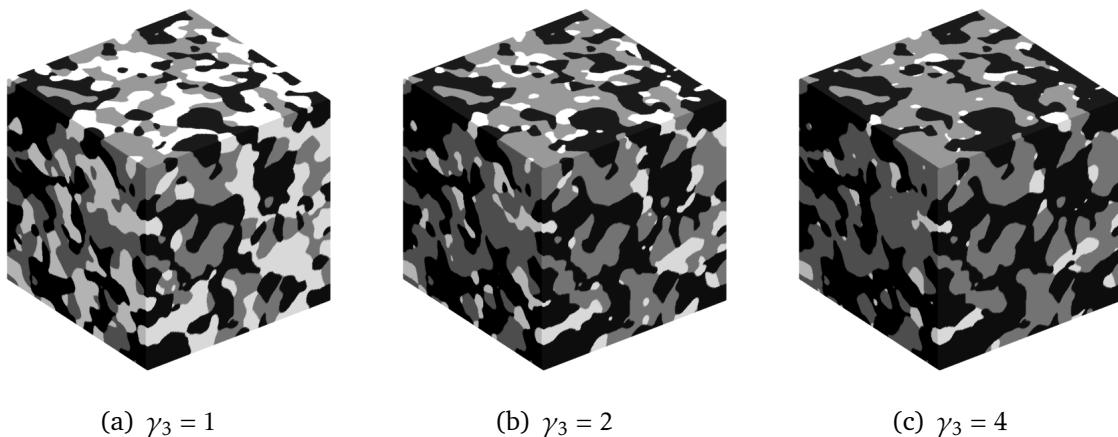
La figure 16 tente d'illustrer l'influence de  $\gamma$  sur la carte de distance issue d'un  $\beta$ -squelette, les arêtes ayant un poids moindre au fur et à mesure que  $\gamma$  augmente.

De la même manière que précédemment avec le paramètre  $b$ , les figures 17 et 18 permettent d'apprécier l'influence du paramètre  $\gamma$  sur la micro-structure du graphe. En effet, il apparaît naturellement que lorsque  $\gamma$  augmente, la fraction volumique de la phase correspondante tend à diminuer étant donné que l'influence des arêtes du graphe va décroître. On peut par ailleurs remarquer le même effet de seuil apparaître, seuil au-delà duquel l'influence de  $\gamma$  sur la fraction volumique est sensiblement amoindrie. On peut enfin également remarquer que la courbe représentant la densité de TPB est sensiblement identique à celle que nous avions obtenue pour le paramètre  $b$ .

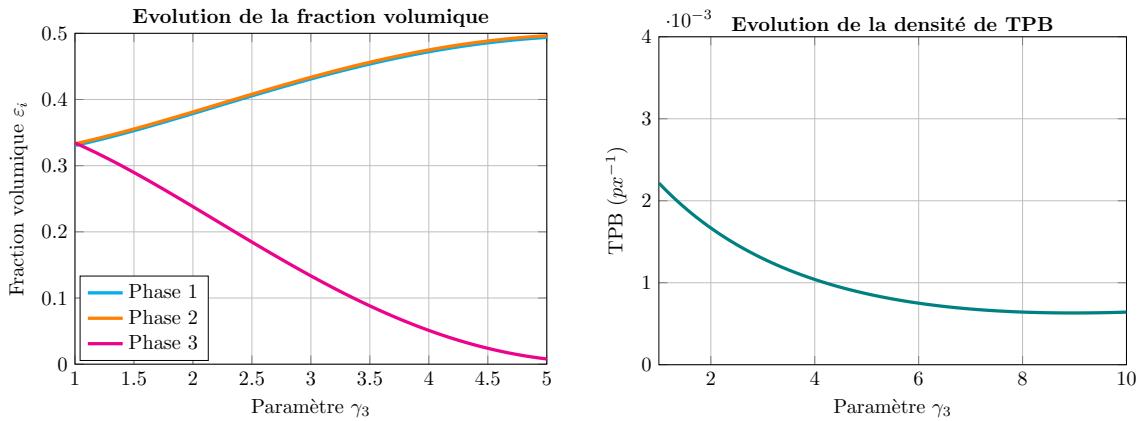


**FIGURE 16** – Illustration de l'influence du paramètre  $\gamma$  sur la carte de distance obtenue à partir de la discréétisation d'un graphe. Quand  $\gamma$  augmente, l'influence des arêtes diminue, ce qui permet en particulier de réduire l'accumulation de la phase correspondante sur ces mêmes arêtes.

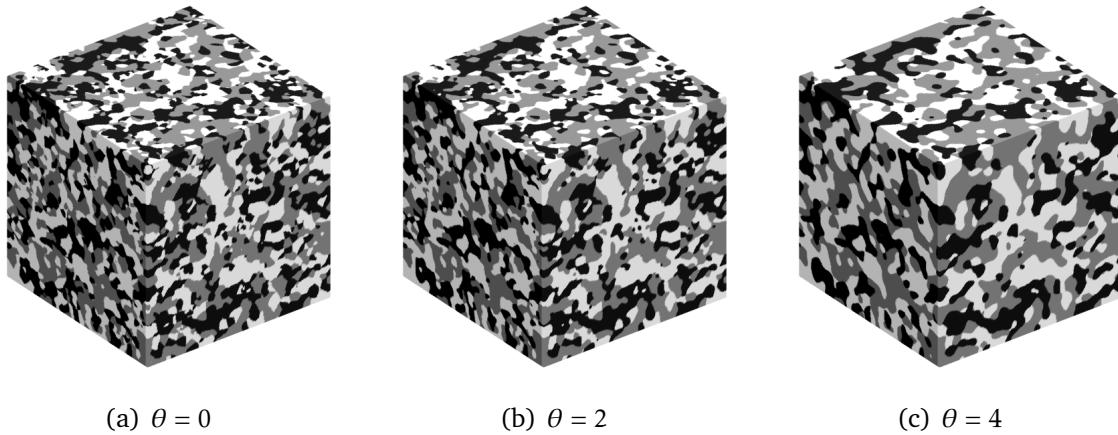
L'introduction de ces trois paramètres supplémentaires permet donc une plus grande souplesse du modèle et un meilleur contrôle de la micro-structure. En particulier, comme nous l'avons mentionné plus tôt, cela permet de mieux apprécier la présence de goulets d'étranglements au sein de certaines phases, tout en préservant la connexité de ces dernières. Cela se révèlera particulièrement important lors du calcul d'autres indicateurs, tels que la tortuosité ou encore la constrictivité. En effet, il est mentionné dans [12] que la constrictivité a tendance à augmenter à partir de  $\gamma > 2$ .



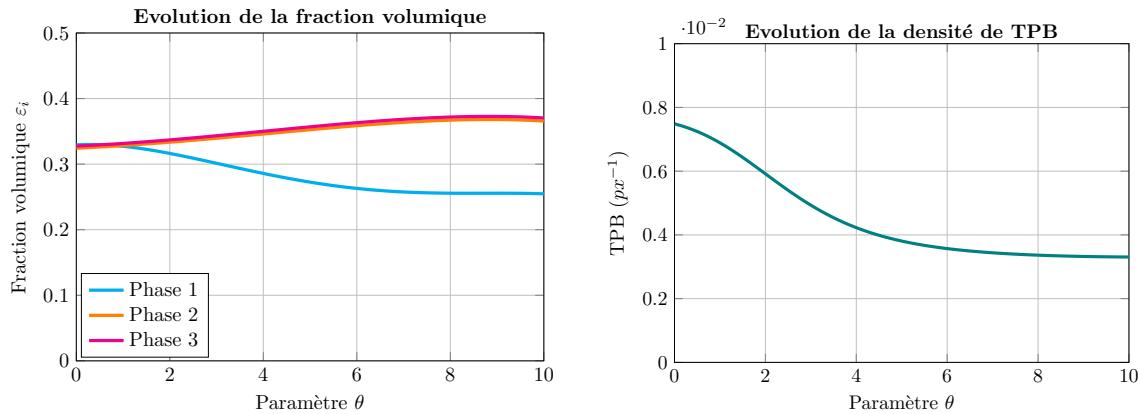
**FIGURE 17** – Illustration de l'influence du paramètre  $\gamma$  sur l'une des phases de la micro-structure triphasée sur un domaine  $V = [0; 300]^3$  avec les paramètres  $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 = 1.10^{-5}$ ,  $b_1 = b_2 = b_3 = 1$  et  $\gamma_1 = \gamma_2 = 1$ . Le paramètre  $\gamma_3$ , quant à lui, varie de 1 à 4. La phase  $\Xi_3$  est colorée en blanc.



**FIGURE 18** – Évolution de la fraction volumique (gauche) de chacune des phases, ainsi que de la densité de points triples (droite) en fonction du paramètre  $\gamma_3$ . Les données sont obtenues en calculant la moyenne de chacun des indicateurs sur un ensemble de 16 simulations par mesure sur un volume  $V = [0; 300]^3$  avec les paramètres de la figure 17.



**FIGURE 19** – Illustration de l'influence du paramètre  $\theta$  sur l'une des phases de la micro-structure triphasée sur un domaine  $V = [0; 300]^3$  avec les paramètres  $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda_3 = 5.10^{-5}$ ,  $b_1 = b_2 = b_3 = 1$  et  $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma_3 = 1$ . Le paramètre  $\theta$ , quant à lui, varie de 0 à 4. La phase  $\Xi_3$  est colorée en blanc. Bien que l'on puisse observer une disparition de certains détails de la structure, il ne faut pas oublier de raisonner dans un volume 3D, et se rappeler que les propriétés de connexité sont malgré tout conservées.



**FIGURE 20** – Évolution de la fraction volumique (gauche) de chacune des phases, ainsi que de la densité de points triples (droite) en fonction du paramètre  $\theta$ . Les données sont obtenues en calculant la moyenne de chacun des indicateurs sur un ensemble de 16 simulations par mesure sur un volume  $V = [0; 300]^3$  avec les paramètres de la figure 19.

#### 2.4.2 Lissage

Le dernier paramètre que nous ajouterons à notre modèle va nous permettre de contrôler la densité de TPB tout en ayant un impact limité sur l'évolution de la fraction volumique. Il s'agit de définir un lissage Gaussien sur les trois phases de la micro-structure.

L'idée est d'appliquer un premier lissage Gaussien entre la phase solide et la phase poreuse, puis un second lissage Gaussien entre les deux différentes phases solides (métallique et céramique). Dans l'article [12], le processus de lissage est défini comme suit.

On considère une fonction  $F$  de  $\mathbb{R}^3$  qui assigne un nombre à chaque point de l'espace en fonction de la phase auquel il appartient. Ainsi, pour  $\theta > 0$ , on considère la fonction

$$\varphi_F(x) = \frac{\int_{\mathbb{R}^3} F(y) \cdot \exp\left(-\frac{|x-y|^2}{2\theta^2}\right) dy}{\int_{\mathbb{R}^3} \exp\left(-\frac{|x-y|^2}{2\theta^2}\right) dy} \quad (2.10)$$

pour tout élément  $x \in \mathbb{R}^3 \cap V$  où  $V$  désigne le domaine.

On définit ensuite deux fonctions  $F_1$  et  $F_2$  de  $\mathbb{R}^3$  de sorte que

$$F_1(x) = \begin{cases} 1 & \text{si } x \in \Xi_1, \\ 2 & \text{sinon,} \end{cases}$$

et

$$F_2(x) = \begin{cases} 3/2 & \text{si } x \in \Xi_1, \\ 2 & \text{si } x \in \Xi_2, \\ 1 & \text{sinon.} \end{cases}$$

Les trois phases de la micro-structure lissée, notées  $\Xi'_1, \Xi'_2, \Xi'_3$  sont définies de la manière suivante.

$$\begin{aligned} \Xi'_1 &= \{x \in \mathbb{R}^3 \mid \varphi_{F_1}(x) \leq 3/2\} \\ \Xi'_2 &= \{x \in \mathbb{R}^3 \mid \varphi_{F_1}(x) > 3/2, \varphi_{F_2}(x) > 3/2\} \\ \Xi'_3 &= \{x \in \mathbb{R}^3 \mid \varphi_{F_1}(x) > 3/2, \varphi_{F_2}(x) < 3/2\} \end{aligned}$$

Comme le lissage est appliqué sur une micro-structure discrète, il est important de noter que la fonction  $\varphi_F$  de l'équation (2.10) est approximée par la fonction  $\hat{\varphi}_F$  définie par

$$\hat{\varphi}(x) = \frac{\sum_{\mathbb{R}^3} F(y) \cdot \exp\left(-\frac{|x-y|^2}{2\theta^2}\right) dy}{\sum_{\mathbb{R}^3} \exp\left(-\frac{|x-y|^2}{2\theta^2}\right) dy}. \quad (2.11)$$

Bien que la connexité des phases ne puisse être garantie après la phase de lissage, les simulations montrent que cette dernière est plutôt bien conservée. La figure 19 illustre l'évolution de la micro-structure en fonction du paramètre  $\theta$ .

La figure 20, quant à elle, nous permet d'apprécier le fait que l'influence du lissage sur la fraction volumique est modérée, surtout si on la compare à celle des paramètres  $b_i$  et  $\gamma_i$ , bien que non-négligeable. D'un autre côté, on peut également constater que le lissage a un impact important sur la densité de TPB, ce qui se révèle appréciable dans une optique d'optimisation et d'ajustement du modèle aux données réelles.

## 2.5 Enrichissement du modèle et exemples

Dans cette section, nous nous proposons d'illustrer la flexibilité du modèle au travers de différents exemples de micro-structures qu'il nous est possible de générer, soit en modifiant simplement le paramétrage, soit en enrichissant le modèle.

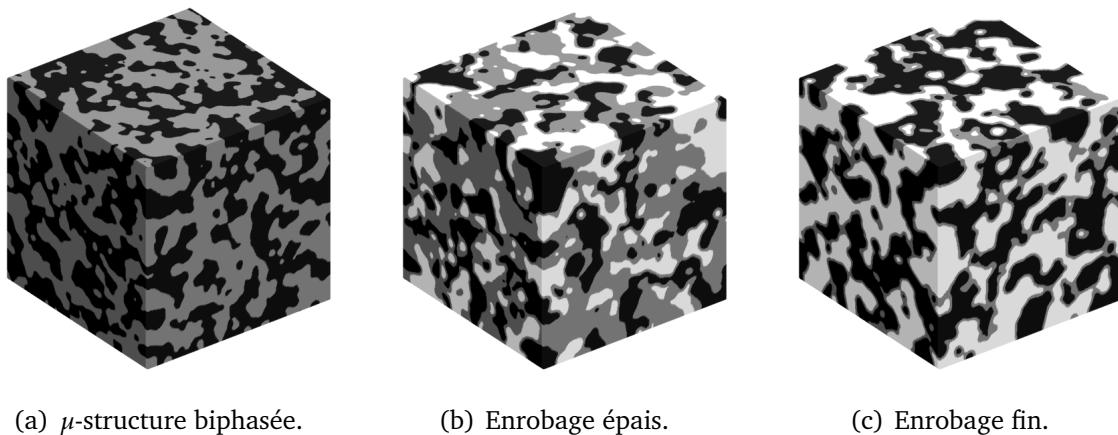
### 2.5.1 Micro-structure biphasée et enrobage

Notre modèle nous permettant de générer des micro-structures triphasées à l'aide de trois  $\beta$ -squelettes, il est tout naturellement possible de générer également des micro-structures biphasées 21(a).

Un type de micro-structure qu'il peut néanmoins être intéressant de savoir simuler est l'enrobage d'une phase par une autre. Autrement dit, dans le cas d'une micro-structure triphasée, il s'agira de s'assurer que la densité de TPB est nulle et que l'une des phases est entièrement incluse dans une autre, c'est-à-dire par exemple

$$(\Xi_2 \cup \Xi_3) \subsetneq \Xi_2 \quad (2.12)$$

ce qui est le cas des figures 21(b) et 21(c).



**FIGURE 21** – Illustration d'une micro-structure biphasée (a) et de deux réalisations de micro-structures pour lesquelles la phase métallique (en blanc) est isolée de la phase porreuse (en noir) (b) et (c).

Pour modéliser ces micro-structures, nous enrichissons notre modèle en ajoutant un paramètre supplémentaire  $r$  qui correspond au rayon d'un élément structurant sphérique  $B_r$ . En ajustant ce paramètre, on peut jouer sur l'épaisseur de l'enrobage. En effet, on définit les deux ensembles aléatoires  $\tilde{\Xi}_2$  et  $\tilde{\Xi}_3$  tels que

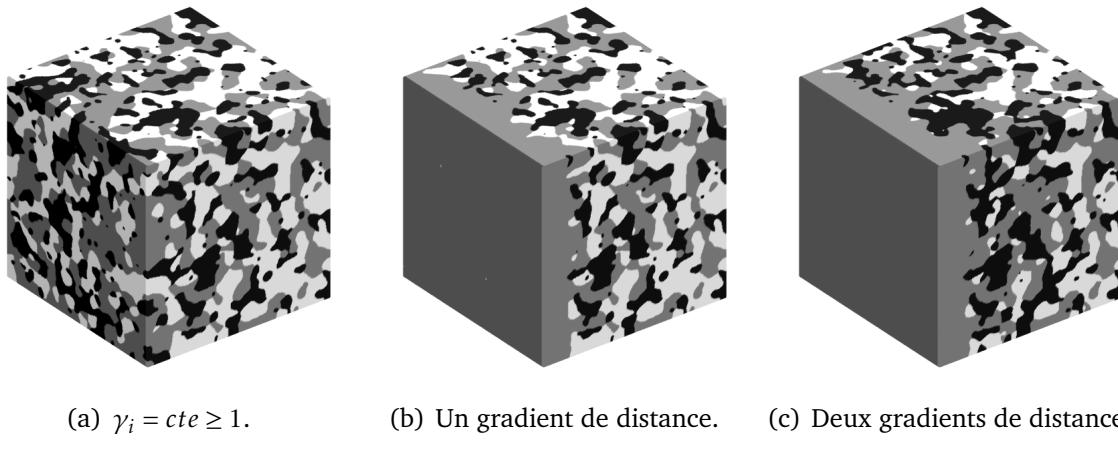
$$\tilde{\Xi}_2 = \Xi_2 \cup \Xi_3 \text{ et } \tilde{\Xi}_3 = \Xi_3 \ominus B_r \quad (2.13)$$

c'est-à-dire que  $\tilde{\Xi}_3$  est obtenu par une opération morphologique d'érosion d'élément structurant  $B_r$  appliquée à  $\Xi_3$ . La micro-structure est alors construite en assignant chacun des points de l'espace à une phase, ces dernières correspondant aux trois ensembles aléatoires  $\Xi_1, \tilde{\Xi}_2, \tilde{\Xi}_3$ .

On fera néanmoins remarquer qu'il est nécessaire de s'assurer que la condition  $\theta < r$  soit remplie afin que l'on ait bien une densité de TPB nulle, sans quoi il est possible que l'opération de lissage fasse apparaître des « trous » dans l'enrobage (ce qui peut toutefois être volontaire).

### 2.5.2 Modélisation d'interface et gradients de distance

Bien qu'il ait été indiqué précédemment que les paramètres  $\gamma_i$  contrôlant la fonction de distance non-Euclidienne  $d'_{\gamma_i}$  et utilisés afin de mieux prendre en compte les goulets d'étranglement, la tortuosité et la constrictivité de la micro-structure doivent remplir la condition  $\gamma_i \geq 1$ , des résultats intéressants peuvent être obtenus en autorisant  $\gamma_i \in \mathbb{R}_+$  et en y associant l'utilisation de gradients de distance.



**FIGURE 22** – Illustration d'une micro-structure avec  $\gamma_i = 2, \forall i = 1, 2, 3$  (a) et de deux réalisations de micro-structures où l'on applique un gradient de distance (b) sur la phase céramique (en gris) et deux gradients de distance (c), l'un sur la phase céramique et l'autre sur la phase métallique (en blanc).

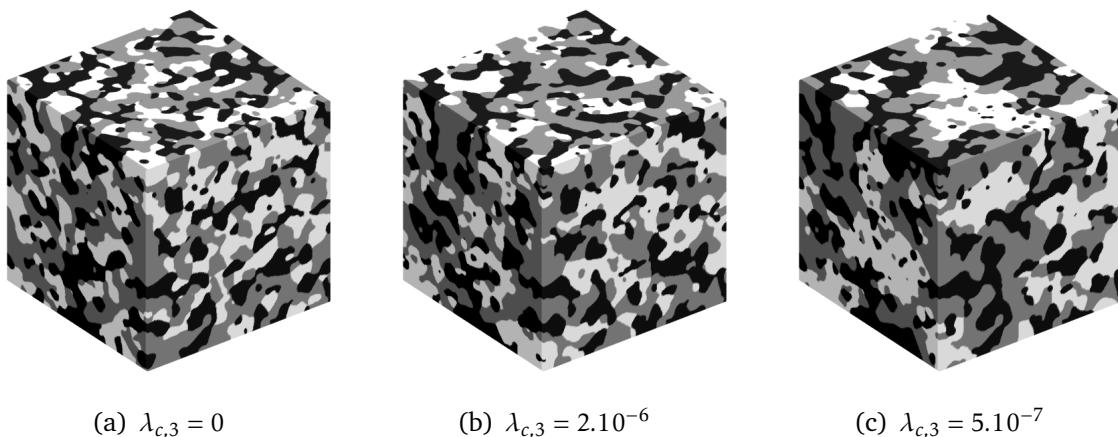
La figure 22 permet d'illustrer l'intérêt de combiner un gradient de distance à des valeurs de  $\gamma_i$  inférieures à 1. En effet, c'est de cette manière qu'il nous est possible de

modéliser l'interface visible sur les figures 22(b) et 22(c). Un gradient de distance supplémentaire est appliqué à la phase métallique sur la micro-structure de la figure 22(c) afin de s'assurer que celle-ci est moins présente à l'interface du domaine.

La fonction utilisée afin de générer le gradient de distance illustré par la figure 22 appartient à la famille des sigmoïdes<sup>4</sup>.

### 2.5.3 Agrégation de points, clusters et macro-pores

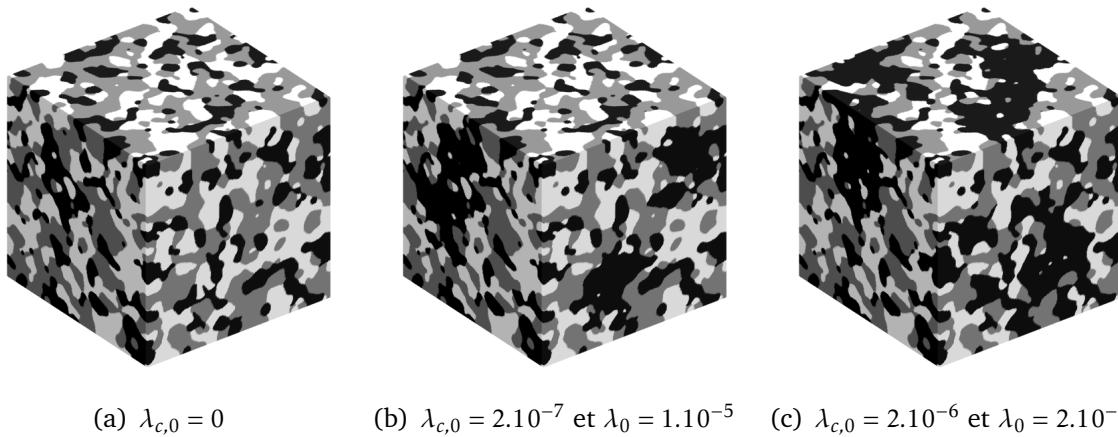
L'utilisation de processus de points non-homogènes lors de la génération des  $\beta$ -squelettes peut être intéressante, notamment afin de modéliser la coalescence de la phase métallique, ou la présence de macro-pores au sein de la micro-structure.



**FIGURE 23** – Illustration d'une micro-structure avec une densité de cluster  $\lambda_{c,3}$  variable pour la phase métallique. Une densité de cluster nulle signifie une répartition spatiale uniforme (a). Néanmoins, une densité de cluster plus faible - (c) par rapport à (b) - mais non-nulle permet d'agréger la phase métallique autour des centres des clusters, ce qui permet de modéliser la coalescence de cette même phase.

La figure 23 permet d'illustrer la possibilité de modéliser la coalescence de la phase métallique en utilisant un processus de points non-homogène pour cette même phase. Ce processus de point est un Processus de Neyman-Scott ([13] et [3]), associé à une loi Normale pour la génération des points autour des centres des clusters. On introduit trois paramètres supplémentaires dans notre modèle, à savoir les densités de cluster  $\lambda_{c,i}$ ,  $i = 1, 2, 3$ . Le nombre de centres de cluster pour chaque phase sera déterminé par un processus de Poisson d'intensité  $\lambda_{c,i}$ , la répartition des centres des clusters étant spatialement uniforme.

<sup>4</sup>La fonction sigmoïde est définie sur  $\mathbb{R}$  par  $f : x \mapsto \frac{1}{1 + e^{-x}}$ .



**FIGURE 24** – Illustration d'une micro-structure avec une densité de cluster  $\lambda_{c,0}$  variable pour la phase 0 (phase poreuse, de même que la phase 1, en noir) permettant de modéliser les macro-pores. Une densité de cluster nulle signifie une absence de macro-pores(a). Une densité  $\lambda_{c,0}$  plus importante associée à une densité de point croissante permet de modéliser un nombre plus important de macro-pores plus grandes - (b) et (c) - au sein de la micro-structure.

On peut également utiliser cette répartition spatiale non-homogène afin de modéliser des macro-pores au sein de la micro-structure (cf. figure 24). L'idée est de générer un ensemble aléatoire supplémentaire  $\Xi_0$  dont la répartition spatiale des points sera agrégée. Ainsi, la phase poreuse ne sera plus associée au seul ensemble aléatoire  $\Xi_1$ , mais à  $\tilde{\Xi}_1$  défini par

$$\tilde{\Xi}_1 = \Xi_0 \cup \Xi_1. \quad (2.14)$$

La micro-structure est finalement reconstruite de manière classique en assignant chacun des points de l'espace à une phase, chaque phase correspondant à l'un des trois ensembles aléatoires  $\tilde{\Xi}_1, \Xi_2, \Xi_3$ .

## 3 Correspondance de graphes

Maintenant qu'il nous est possible de modéliser des micro-structures triphasées à l'aide de graphes aléatoires, il convient de s'intéresser à la seconde partie de nos travaux, qui nécessite d'être capable de trouver une transformation continue d'une micro-structure à une autre, afin de tenir compte de l'évolution temporelle des cellules solide oxyde.

Pour ce faire, nous introduisons la notion de *graph matching* ou correspondance de graphes. L'idée est d'associer chacun des graphes aléatoires de la micro-structure de l'état initial à ceux de la micro-structure de l'état final, puis d'établir une transformation, aussi lisse et continue que possible.

Dans la partie suivante, nous présenterons les résultats que Xiaoyang Guo a obtenu et formalisé dans l'article [7], et au sein duquel il met en relation des graphes dans un cadre très général.

### 3.1 Définition

#### 3.1.1 Métrique et géodésiques

On considère deux graphes  $G_1$  et  $G_2$  à  $n$  sommets, de matrices d'adjacence respectives  $A_1, A_2 \in \mathcal{M}^{n^2}$ . Dans le cadre qui nous intéresse, nous nous limiterons aux graphes non orientés, ce qui signifie que l'on a  $A_i^\top = A_i$ ,  $i = 1, 2$ , c'est-à-dire que les matrices  $A_i$ ,  $i = 1, 2$  sont symétriques. De plus, bien que l'article de Xiaoyang Guo propose une méthode valable pour n'importe quelle variété Riemannienne  $\mathcal{M}$  sur laquelle il est possible de définir une distance, nous nous limiterons au cas où  $\mathcal{M} = \mathbb{R}$ . Enfin, les sommets de nos graphes n'ayant pas de poids, les coefficients des matrices d'adjacences  $A_1$  et  $A_2$  seront à valeur dans  $\{1; 2\}$ .

Avec toutes ces hypothèses, on peut définir la métrique suivante

$$d_a(A_1, A_2) \equiv \sqrt{\sum_{i,j} d(a_{i,j}^1, a_{i,j}^2)^2} \quad (3.1)$$

pour tout couple  $(A_1, A_2) \in \mathcal{A}^2$  avec  $d$  la distance Euclidienne,  $a_{i,j}^1$  et  $a_{i,j}^2$  les coefficients respectifs des matrices  $A_1$  et  $A_2$ , et  $\mathcal{A} = \{A \in \mathcal{M}^{n^2} \mid A = A^\top\}$ , l'ensemble des matrices symétriques de  $\mathcal{M}^{n^2}$ .

Ainsi, on peut définir une géodésique comme le plus court chemin dans  $\mathcal{A}$  entre les deux matrices  $A_1$  et  $A_2$ . Dans le cas où  $\mathcal{M} = \mathbb{R}$ , cette géodésique est une ligne droite, et l'on peut alors définir la transformation  $\theta : [0, 1] \rightarrow \mathcal{A}$  telle que

$$\theta(t) = (1 - t)A_1 + tA_2 \quad (3.2)$$

qui n'est autre que le chemin géodésique entre  $A_1$  et  $A_2$ .

### 3.1.2 Permutations et espace quotient

Le problème qui va vite se poser à nous est celui de l'ordonnancement des sommets des graphes. En effet, la numérotation des sommets d'un graphe est arbitraire, et ne doit pas entrer en ligne de compte lors de la recherche du chemin géodésique entre deux graphes. Par conséquent, il est nécessaire, avant toute autre chose, de rechercher une permutation  $P \in \mathcal{P}$  où  $\mathcal{P}$  est l'ensemble des matrices de permutation de taille  $n \times n$  de sorte que l'étiquetage des sommets de  $G_1$  corresponde au mieux à celui des sommets de  $G_2$  après les avoir permutés.

En particulier, on peut montrer [7] qu'il existe une relation d'équivalence sur l'ensemble  $\mathcal{A}$  définie par

$$A_1 \sim A_2 \Leftrightarrow \exists P \in \mathcal{P}, PA_1 P^\top = A_2. \quad (3.3)$$

Dès lors, on peut quotienter l'espace  $\mathcal{A}$  par  $\mathcal{P}$ , afin d'obtenir l'espace des classes d'équivalence pour la relation définie ci-dessus sur  $\mathcal{A}$ , et l'on pose

$$\mathcal{G} \equiv \mathcal{A}/\mathcal{P} = \{[A] \mid A \in \mathcal{A}\} \quad (3.4)$$

avec  $[A]$  l'orbite de  $A \in \mathcal{A}$  sous l'action de  $\mathcal{P}$ , définie par

$$[A] = \{PAP^\top \mid P \in \mathcal{P}\}. \quad (3.5)$$

L'espace  $\mathcal{G}$  est alors un espace non linéaire, du fait de sa nature d'espace quotient, sur lequel il convient de redéfinir la distance  $d_a$  de l'équation (3.1).

La nouvelle métrique sur l'espace  $\mathcal{G}$  est alors définie par

$$d_g([A_1], [A_2]) = \min_{P \in \mathcal{P}} d_a(A_1, PA_2 P^\top) = \min_{P \in \mathcal{P}} d_a(A_2, PA_1 P^\top) \quad (3.6)$$

La matrice  $P^*$  qui minimise la distance  $d_a$  dans l'équation (3.6) permet la meilleure correspondance possible entre les sommets des graphes  $G_1$  et  $G_2$ . Ainsi, chaque élément de  $A_1$  est associé à un élément de la matrice  $P^* A_2 P^{*\top}$ .

Comme l'ensemble des matrices de permutation est fini, on sait que  $P^*$  existe. Néanmoins, il n'est pas nécessairement unique, en particulier dans le cas qui nous intéresse, lorsque les attributs des sommets sont discrets, voir tous égaux.

Enfin, on peut définir, à la manière de l'équation (3.2), une transformation géodésique de  $[A_1]$  vers  $[A_2]$  dans l'espace  $\mathcal{G}$  en considérant le chemin  $t \rightarrow [\theta(t)]$ .

### 3.1.3 Problème de correspondance de graphes

Le problème de minimisation soulevé par l'équation (3.6), à savoir le calcul de la distance<sup>5</sup> entre deux graphes  $G_1$  et  $G_2$ , revenant à une recherche de minimum et d'une matrice de permutation  $P^*$ , est un préalable à l'établissement du chemin géodésique entre ces deux graphes. Le problème peut alors être posé de la manière suivante.

$$P^* = \underset{P \in \mathcal{P}}{\operatorname{argmin}} \|PA_1P^\top - A_2\|^2 \quad (3.7)$$

Néanmoins, il n'est pas évident que nous aurons toujours affaire à des graphes ayant le même nombre  $n$  de sommets. Par conséquent, il est proposé dans l'article [7] deux façons de procéder en considérant soit des matrices de taille  $\max(n_1, n_2)$ , soit de taille  $n_1 + n_2$ , avec  $n_1$  et  $n_2$  les nombres de sommets respectifs des deux graphes  $G_1$  et  $G_2$ . Dans le cadre présent, nous nous limiterons au cas de matrices de taille  $\max(n_1, n_2)$ , ce qui reviendra à compléter l'un des deux graphes par des sommets nuls, qui n'auront donc aucun attribut et ne seront donc connectés à aucun autre sommet du graphe, la matrice d'adjacence correspondante étant complétée par des zéros en conséquence.

Afin de résoudre le problème posé par l'équation (3.7), il nous est proposé deux méthodes. La première se révélant inadaptée à des graphes de grande taille, nous ne l'évoquerons pas plus avant. Quant à la seconde, elle se base sur l'algorithme de Frank-Wolfe [5] développé dans l'article [17] et appelé *Fast Approximate Quadratic* (FAQ). L'idée est de réécrire le problème sous la forme suivante.

$$P^* = \underset{P \in \mathcal{P}}{\operatorname{argmin}} (-\operatorname{Tr}(A_2PA_1P^\top)) \quad (3.8)$$

Il est alors possible de le résoudre par descente de gradient en utilisant la fonction de coût définie par

$$f(P) = -\operatorname{Tr}(A_2PA_1P^\top). \quad (3.9)$$

En revanche, comme les coefficients de  $P$  sont à valeur dans  $\{0; 1\}$ , il convient de se placer dans un espace plus grand, à savoir l'espace  $\mathcal{D}$  des matrices bistochastiques. Il s'agit de matrices non-négatives dont la somme des coefficients de chacune des lignes et des colonnes est égale à 1. Une fois la solution trouvée, on la projette sur l'espace des matrices de permutation  $\mathcal{P}$ .

La figure 25 illustre le résultat obtenu en appliquant cette méthode à des graphes représentant des lettres de l'alphabet. Par exemple, pour les graphes de la figure 25(a), la

---

<sup>5</sup>Dans toute la suite, on parlera sans distinction de la distance entre deux graphes, entre leurs matrices d'attributs (ici matrices d'adjacence) et leurs classes d'équivalences dans  $\mathcal{G}$  respectives.

permutation obtenue est

$$P_{FA} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

et l'on peut constater en particulier que le sommet étiqueté par « 1 » conserve bien son étiquette.

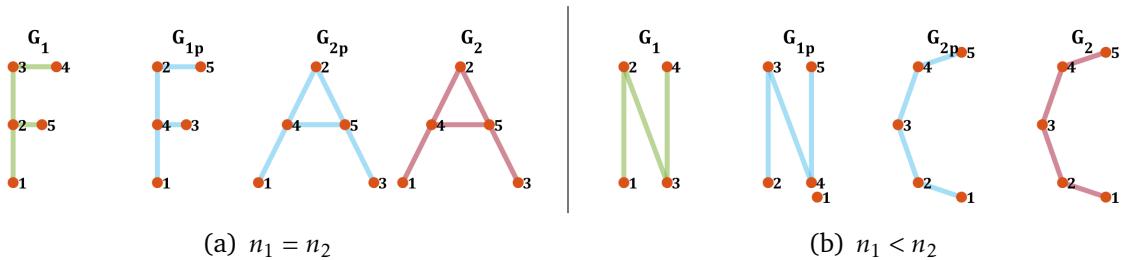
En ce qui concerne les graphes de la figure 25(b), la matrice de permutation correspondante est

$$P_{NC} = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.11)$$

On peut remarquer que ce cas correspond à celui où l'on n'a pas le même nombre de sommets, car en effet, on a  $n_1 < n_2$ , ce qui nécessite l'ajout d'un sommet nul au premier graphe.

L'étiquetage de ce sommet nul est décidé lors de la mise en œuvre de l'algorithme FAQ et sa position est arbitraire. Néanmoins, pour des raisons qui deviendront parfaitement justifiées par la suite, on lui attribue les mêmes coordonnées que celles du sommet de l'autre graphe qui lui a été associé.

On peut par ailleurs remarquer que, comme nous venons de le mentionner, la position des sommets importe peu, et que seule la matrice d'adjacence est prise en compte lors de la recherche de correspondance des graphes. Ainsi, c'est pour cette raison que la



**FIGURE 25** – Exemple de permutation de l'étiquetage des sommets des graphes avant de maximiser la correspondance entre ces derniers pour un nombre de sommets identiques (a) et différents (b). Les graphes  $G_1$  et  $G_2$  sont les graphes à associer. Les graphes  $G_{1p}$  et  $G_{2p}$  sont obtenus après permutation éventuelle de l'étiquetage des sommets. On peut voir l'apparition de sommets virtuels lorsque  $n_1 \neq n_2$  (b).

connexité des sommets  $1 - 2 - 3 - 4$  du graphe  $G_1$  devenus  $2 - 3 - 4 - 5$  dans  $G_{1p}$  est conservée et se retrouve dans les graphes  $G_{2p}$  et  $G_2$ .

### 3.1.4 Prise en compte des attributs des sommets

Comme nous venons de le voir, nous sommes pour l'instant capable de mettre en correspondance deux graphes en prenant en compte la présence ou l'absence d'arêtes entre les sommets. Ainsi, comme susmentionné, ce sont uniquement les matrices d'adjacence de chacun des graphes qui sont prises en compte. Par ailleurs, nous nous sommes restreints au cas particulier où les coefficients de ces dernières sont à valeur dans  $\{0; 1\}$ , ce qui n'est en aucun cas une condition nécessaire pour le bon fonctionnement de l'algorithme FAQ.

Néanmoins, il nous est pour l'instant impossible de prendre en compte la position des sommets dans l'espace, ce qui nous intéresse pourtant au plus haut point, étant donné que nous cherchons in fine à mettre en correspondance deux  $\beta$ -squelettes qui forment la base d'une micro-structure réelle et solide. Il est donc primordial que la position des sommets, et donc la distance entre ces derniers, puisse avoir une influence sur leur processus d'association.

Autrement dit, il doit être possible d'ajouter des attributs aux sommets, dans notre cas, leur position dans l'espace, et d'en tenir compte au sein de la fonctionnelle à minimiser. Cette extension de l'algorithme [17] est proposée par [7] et formalisée de la manière suivante. Il s'agit de considérer l'ensemble  $\mathcal{N}$  des attributs possibles pour chaque sommet, et de définir une fonction  $\alpha : V \mapsto \mathcal{N}$ , où  $V$  représente l'ensemble des sommets d'un graphe  $G$ , qui à chaque sommet associe un attribut. Il convient ensuite de définir une distance  $d_\alpha : \mathcal{N} \times \mathcal{N} \mapsto \mathbb{R}^+$ . Pour deux graphes  $G_1 = (V_1, \alpha_1)$  et  $G_2 = (V_2, \alpha_2)$  de même taille  $n$ , on considère la matrice  $D \in \mathcal{M}_n(\mathbb{R}^+)$  de paires de distances carrées entre chacun des sommets des deux graphes, c'est-à-dire

$$D = (d_{ij})_{i,j=1..n} \quad \text{avec} \quad d_{ij} = d(\alpha_1(v_i^{(1)}), \alpha_1(v_j^{(2)}))^2 \quad (3.12)$$

avec  $v_i^{(1)} \in V_1$  et  $v_j^{(2)} \in V_2$ , pour  $i, j = 1..n$ .

On peut ainsi reformuler le problème (3.7) de la façon suivante.

$$P^\star = \underset{P \in \mathcal{P}}{\operatorname{argmin}} \left\{ \|PA_1P^\top - A_2\|^2 + \omega \operatorname{Tr}(PD) \right\} \quad (3.13)$$

avec  $\omega > 0$  un paramètre d'ajustement qui permet d'équilibrer la contribution des attributs des arêtes (connectivité et/ou poids de part la matrice d'adjacence) et de ceux des sommets (leur position dans notre cas, de part la matrice de paires de distances carrées  $D$ ).

Enfin, on peut également reformuler le problème (3.8) utilisé dans le cadre de l'algorithme FAQ, de sorte qu'il puisse s'écrire comme suit.

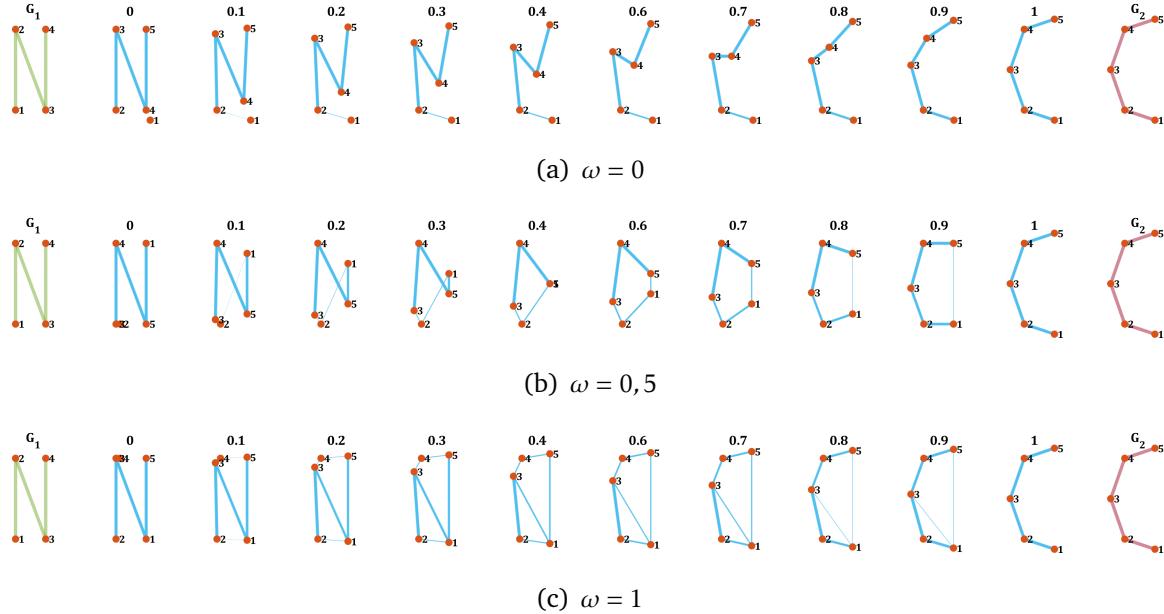
$$P^* = \underset{P \in \mathcal{P}}{\operatorname{argmin}} \left( -\operatorname{Tr}(A_2 P A_1 P^\top) + \omega \operatorname{Tr}(PD) \right) \quad (3.14)$$

Ainsi, le gradient de la nouvelle fonctionnelle à utiliser dans le cadre de la descente de gradient sera la suivante.

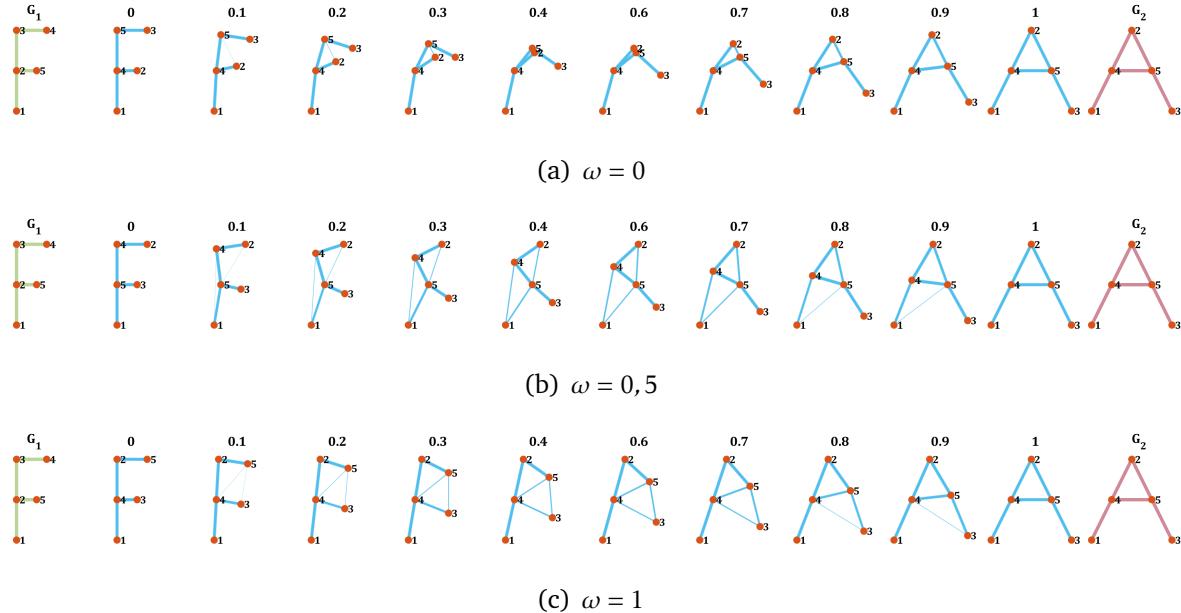
$$\nabla f(P) = -A_2 P A_1^\top - A_2^\top P A_1 + \omega D^\top \quad (3.15)$$

La figure 26 permet d'illustrer la mise en œuvre de l'algorithme du problème d'affectation quadratique FAQ, enrichi par la prise en compte des attributs de sommets de part la présence de la matrice  $D$  dans l'équation (3.14). On peut en particulier constater l'apparition de chemins géodésiques différents entre les deux graphes  $G_1$  et  $G_2$  représentants respectivement les lettres de l'alphabet  $N$  et  $C$ .

En particulier, dans le cadre qui nous concerne, à savoir la correspondance de graphes aléatoires représentants le squelette d'une même micro-structure à deux instants diffé-



**FIGURE 26** – Exemple de correspondance de graphes pour des valeurs croissantes du paramètre  $\omega$ . Les graphes  $G_1$  et  $G_2$  sont les graphes à associer. Les graphes  $G_{1p}$  et  $G_{2p}$  sont obtenus après permutation éventuelle de l'étiquetage des sommets. On peut voir que la connexité des sommets ré-étiquetés 2 – 3 – 4 – 5 du graphe  $G_1$  est conservée lorsque  $\omega = 0$  (a). En revanche, plus  $\omega$  augmente, plus la position des sommets est importante lors de l'association des sommets (b) et (c). La valeur indiquée au-dessus des graphes correspond au paramètre  $t$  du chemin géodésique  $\theta(t)$ .



**FIGURE 27** – Autre exemple de correspondance de graphes pour des valeurs croissantes du paramètre  $\omega$ .

rents, il semble naturel d'accorder une plus grande importance à la position des sommets, d'autant plus que l'existence des arêtes, et par conséquent les coefficients de la matrice d'adjacence, est décidée par un paramètre  $b$ , propre aux  $\beta$ -squelettes.

La figure 27 illustre la même mise en correspondance de deux graphes  $G_1$  et  $G_2$  représentants respectivement les lettres de l'alphabet  $F$  et  $A$ , et ayant un même nombre de sommets, ainsi que le chemin géodésique correspondant. Sur ce deuxième exemple, la transition semble plus lisse et naturelle pour des valeurs non-nulles de  $\omega$ , c'est-à-dire, lorsque l'on prend en compte la position des sommets dans l'espace, ce qui n'était pas forcément évident sur la figure 26.

En revanche, il faut se rappeler qu'il s'agit là de cas très particuliers, et que la structure de ces graphes n'est en aucun cas celle d'un  $\beta$ -squelette. Ainsi, on se propose, dans la section suivante, de présenter des exemples de correspondance de graphes et de chemins géodésiques entre  $\beta$ -squelettes, afin de mieux justifier le choix que nous ferons d'une valeur élevée pour le paramètre  $\omega$ .

Enfin, on rappellera que les graphes aléatoires utilisés pour la modélisation de nos micro-structures ne possèdent pas d'attributs sur les arêtes. Par conséquent, une arête est soit présente, soit absente, et il ne sera pas possible d'effectuer une transition aussi douce que celles proposées par les chemins géodésiques que présentent les figures 26 et 27, où l'épaisseur de chacune des arêtes est proportionnelle à son coefficient dans la

matrice d'adjacence  $A(t) = (1 - t)A_1 + tA_2$ .

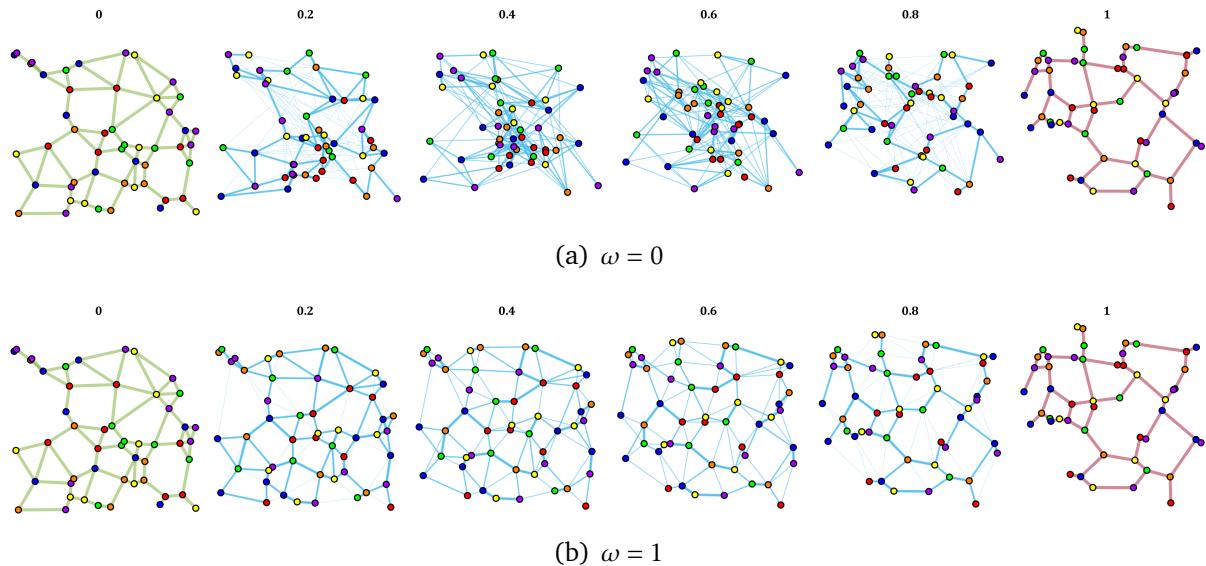
## 3.2 Exemples

### 3.2.1 Correspondance de $\beta$ -squelettes

Les  $\beta$ -squelettes sont des graphes aléatoires non-orientés, dont les arêtes ne possèdent pas d'attribut. Ainsi, leur matrices d'adjacence sont discrètes, et ont leurs coefficients à valeur dans  $\{0; 1\}$ . Les attributs des sommets, quant à eux, sont leurs coordonnées spatiales.

Ainsi, lorsqu'il va s'agir de mettre en correspondance deux  $\beta$ -squelettes, ce n'est pas tant la connexité des sommets et les matrices d'adjacences qui nous intéressent, mais plutôt la position des sommets, et leurs distances les uns des autres. Il conviendra ainsi d'attribuer un poids plus important à la matrice  $D$  des paires de distances carrées dans le problème de minimisation (3.14), à l'aide du paramètre  $\omega$ .

S'il peut sembler étonnant de ne pas se préoccuper de la connexité entre les sommets, c'est-à-dire des arêtes, et donc des matrices d'adjacences, il faut rappeler que dans le cadre tout particulier d'un  $\beta$ -squelette, les arêtes dépendent directement de la position



**FIGURE 28** – Illustration de deux chemins géodésiques lors de l'association de deux  $\beta$ -squelettes  $G_{b_1}$  et  $G_{b_2}$  de même taille, avec  $b_1 = 1 < b_2 = 2$ . La prise en compte de la matrice d'adjacence uniquement (a) ne donne pas de très bons résultats, alors que la transformation devient beaucoup plus naturelle lorsque  $\omega = 1$  (b), c'est-à-dire lorsque l'on attribue un fort poids à la position des sommets lors de l'association des graphes.

des sommets et du paramètre  $b$  de chaque graphe. Dans la section 3.2.2 suivante, nous montrerons comment utiliser cette propriété à notre avantage, afin d'obtenir une transformation plus naturelle.

La figure 28 permet d'illustrer la différence de chemin géodésique obtenue selon que l'on affecte 28(b) ou non 28(a) un fort poids à la position des sommets. Il semble alors presque évident qu'il convient d'attribuer un poids important à la position des sommets, et que la connexité seule de ces derniers n'est pas suffisante pour le champ d'application qui est le nôtre, à savoir l'évolution temporelle d'une micro-structure.

### 3.2.2 Lissage temporel

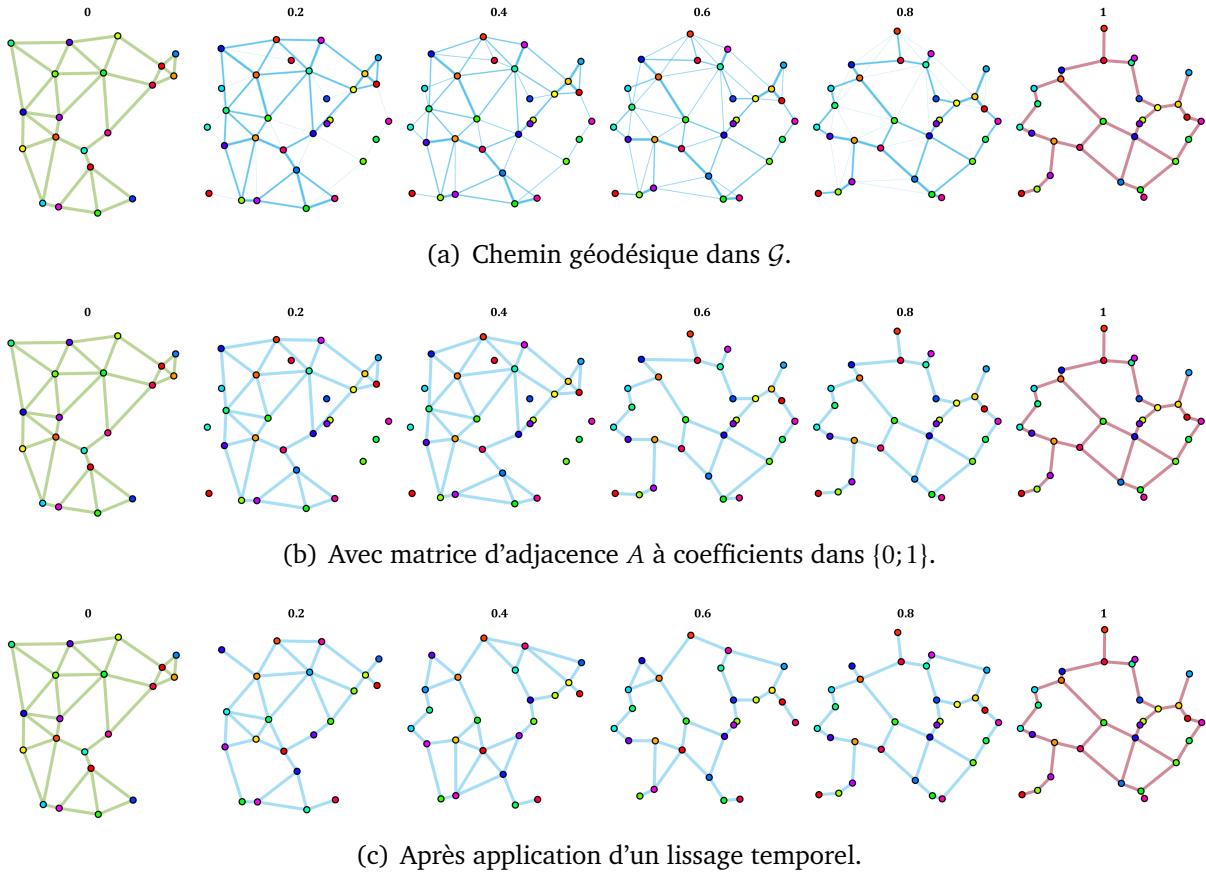
Dans la section précédente, on illustre l'importance d'affecter un poids important  $\omega \geq 1$  à la matrice  $D$  des paires de distances carrées, c'est-à-dire à la position des sommets des graphes à mettre en correspondance. Néanmoins, la figure 28 nous propose le cas de deux graphes de même taille.

Si l'on a deux graphes de taille différente, le problème des sommets nuls se présente à nous. En effet, lorsque l'on cherche à faire correspondre deux graphes de taille différente, on complète celui de plus petite taille par des sommets nuls, sans coordonnées spatiales, et déconnectés de tous les autres sommets du graphe. Se pose alors la question de savoir quand faire apparaître ces sommets qui sont nuls pour un graphe, mais bel et bien présents dans l'autre, et partageant très souvent des arêtes avec d'autres sommets.

La figure 29 nous permet d'illustrer ce problème, et notamment la figure 29(a), où l'on peut apercevoir une transformation d'un graphe  $G_1$  en un graphe  $G_2$  le long d'un chemin géodésique. Néanmoins, aussi fluide que cette transformation puisse être, on ne peut s'empêcher de remarquer l'apparition de 10 sommets nuls entre les instants  $t = 0$  et  $t = 0,2$  (en réalité, dès que l'on a  $t > 0$ ).

Cet effet s'aggrave d'autant plus lorsque l'on ne considère plus une matrice d'adjacence à coefficients réels mais discrets, à valeur dans  $\{0; 1\}$ , comme c'est le cas pour les  $\beta$ -squelettes. Dans ce cas, on définit un seuil arbitraire en deçà duquel les arêtes n'existent pas. La figure 29(b) illustre parfaitement bien le phénomène de cassure qui se produit alors, à l'instant  $t = 0,5$  dans ce cas, à un instant  $t$  dépendant directement du seuil choisi.

Afin d'obtenir une transformation plus lisse et « continue », on propose d'appliquer une sorte de lissage temporel, illustré par la figure 29(c). Ici, bien que la matrice d'adjacence ait ses coefficients à valeur dans  $\{0; 1\}$  et qu'il y ait toujours autant de sommets nuls à faire apparaître, la transformation semble plus naturelle.



**FIGURE 29** – Illustration de trois chemins géodésiques différents lors de la recherche de correspondance entre deux graphes. Le chemin géodésique dans l'espace  $\mathcal{G}$  (a) n'est pas adapté à notre problème qui nécessite une matrice d'adjacence à valeurs dans  $\{0; 1\}$  (b). Dans ces deux cas, les éventuels sommets nuls apparaissent tous au même instant  $t > 0$ , ce qui est peu réaliste et ne permet pas de transition fluide (cf. (b) entre  $t < 0,5$  et  $t > 0,5$ ). L'application d'un lissage temporel (c) permet de pallier ces difficultés en utilisant la matrice d'adjacence  $A(t)$  obtenue après un nouveau calcul des arêtes du  $\beta$ -squelettes à l'aide du paramètre  $b(t)$  défini en (3.16) et en faisant apparaître les sommets nuls au fur et à mesure du parcours du chemin géodésique.

En effet, nous décidons de faire apparaître les sommets nuls de manière uniforme au fur et à mesure de l'évolution « temporelle » du graphe le long du chemin géodésique, plutôt que tous au même instant.

De plus, si l'on note  $G_{b_1}$  et  $G_{b_2}$  deux  $\beta$ -squelettes de paramètres respectifs  $b_1$  et  $b_2$ , on se propose de noter  $G_{b(t)}$  le graphe obtenu en suivant le chemin géodésique défini dans la section 3.1.2, avec

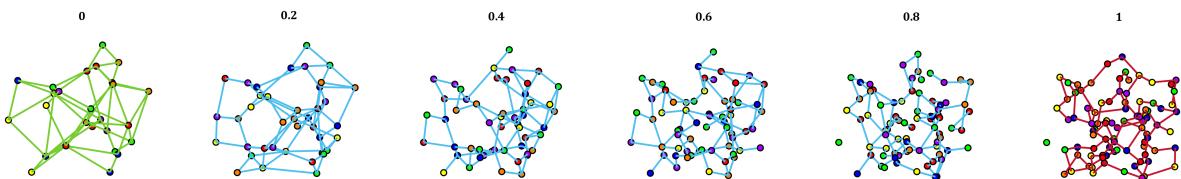
$$b(t) = (1 - t)b_1 + tb_2. \quad (3.16)$$

Le graphe  $G_{b(t)}$  est alors un  $\beta$ -squelette de paramètre  $b(t)$ , ce qui permet d'avoir une transformation bien plus naturelle, comme l'illustre la figure 29(c). Par ailleurs, le problème de la prise en compte de la connexité ne se pose plus car, en réalité, la connexité des sommets ne dépendant que de la position de ces derniers et du paramètre  $b$ , les uns et l'autre suivants des chemins géodésiques définis par l'association de  $G_{b_1}$  et  $G_{b_2}$ , les matrices d'adjacence  $A(t)$  des graphes  $G_{b(t)}$  suivent bien, elles-mêmes, un chemin géodésique continu de  $A_1$  vers  $A_2$ , matrices d'adjacence respectives des graphes  $G_{b_1}$  et  $G_{b_2}$ .

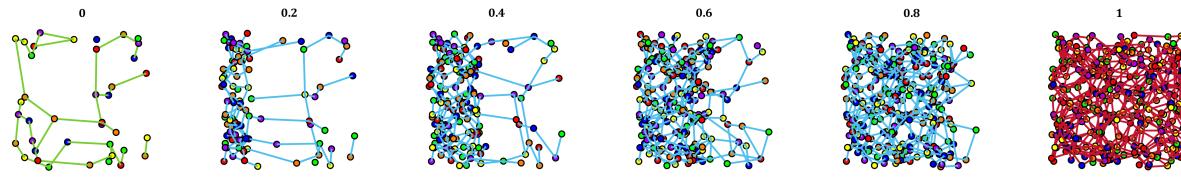
### 3.2.3 Graphes de $\mathbb{R}^3$ et gradient spatial

Comme il est dit dans les sections précédentes, l'extension proposée de l'algorithme FAQ d'association de graphes peut être mise en œuvre dans un cadre très général, avec des attributs de sommets et d'arêtes définis sur n'importe quelle variété Riemannienne, tant qu'il est possible d'y définir une métrique.

Par conséquent, c'est tout naturellement que l'on peut considérer comme attributs des sommets leurs coordonnées dans  $\mathbb{R}^3$ , comme l'illustre la figure 30(a). On y voit en particulier l'association de deux  $\beta$ -squelettes de tailles nettement différentes et de paramètres  $b_i$  également différents. Le chemin géodésique est parcouru en appliquant le lissage évoqué dans la section précédente, et illustré par la figure 29(c) pour des graphes dans  $\mathbb{R}^2$ .



(a) Lissage temporel uniforme.



(b) Lissage temporel à gradient spatial.

**FIGURE 30** – Illustration d'un chemin géodésique avec lissage temporel uniforme (a) et à gradient spatial (b) pour deux  $\beta$ -squelettes de tailles différentes.

Enfin, afin de mettre en évidence la flexibilité de cette méthode, on se propose d'appliquer un gradient spatial à notre lissage temporel. En effet, jusqu'à présent, ce dernier était uniforme et isotrope, mais la figure 30(b) montre qu'il peut être possible de contrôler ce processus, ce qui pourrait permettre de modéliser certains phénomènes de diffusion au sein d'une micro-structure par exemple.

Le fait de rendre le parcours du chemin géodésique entre deux graphes le plus « lisse » possible est important en ce sens qu'il s'agit pour nous de modéliser l'évolution d'une micro-structure bel et bien réelle, et qu'il est nécessaire, autant que faire se peut, de limiter l'apparition ou la disparition spontanée de matière.

## 4 Résultats

À présent qu'il nous est possible de modéliser des micro-structures triphasées à l'aide de graphes aléatoires et que nous savons comment créer un chemin géodésique entre deux graphes, nous pouvons modéliser deux états différents d'une même micro-structure à des temps différents, et définir une transformation continue entre ces deux états en suivant les chemins géodésiques produits par l'association des graphes sous-jacents.

Dans cette partie, nous nous proposons d'exposer la méthodologie que nous avons suivie afin d'ajuster le modèle aux données, et de quelle manière il nous est possible de valider cette démarche, tout en indiquant ses limites, et en proposant des pistes d'amélioration.

### 4.1 Optimisation et validation d'une micro-structure virtuelle

#### 4.1.1 Optimisation

La méthode développée dans la partie 2 nous permet de modéliser des micro-structures triphasées à l'aide de  $\beta$ -squelettes en attribuant un graphe aléatoire à chaque phase. Ce modèle paramétrique étant relativement flexible, il est donc possible, en jouant sur les 10 paramètres à notre disposition, de l'ajuster aux données réelles autant que faire se peut.

Néanmoins, le mode de génération de la micro-structure, nécessitant de générer trois  $\beta$ -squelettes, de les discréteriser, puis de calculer des cartes de distance, avant de les comparer les unes aux autres, peut se révéler particulièrement lent pour des domaines de grandes tailles et/ou des densités de points et des nombres d'arêtes élevés.

Par exemple, sur un domaine  $V = [0; 200]^3$ , le temps de génération d'une micro-structure avec une densité de points  $\lambda_i$  de l'ordre de  $10^{-4}$  pour chacun des graphes, il faut compter une dizaine de secondes. De plus, l'utilisation de graphes aléatoires impose de calculer les indicateurs souhaités sur un nombre important de micro-structures de paramétrage identique. Dans notre cas, nous générerons entre 12 et 16 micro-structures identiques pour chaque paramétrage différent, ce qui représente un temps de calcul de l'ordre de la minute, grâce à la parallélisation de ces derniers.

Afin d'ajuster le modèle aux données réelles, nous nous basons sur deux critères : la fraction volumique  $\varepsilon_i$  et la densité de TPB. La fraction volumique  $\varepsilon_i$  d'une phase  $i$  est le volume de la phase  $i$  normalisé, c'est-à-dire divisé par le volume du domaine  $V$ . La densité de TPB, notée  $\xi_{TPB}$ , est, comme son nom l'indique, la densité de la frontière des points triples. Autrement dit, il s'agit de la longueur de la frontière réalisée par les voxels situés à l'interface des trois phases, normalisée par le volume du domaine  $V$ , en appliquant une régularisation du fait du caractère discret de ce dernier.

L'algorithme d'optimisation utilisé est le CMA-ES ([1] et [2]), ou *Covariance Matrix Adaptation Evolution Strategies* en anglais, qui permet une recherche d'extremum globaux efficace sur des espaces de grande dimension. Il convient par conséquent de définir la fonction de coût à optimiser comme suit.

$$f_T(\boldsymbol{x}) = \sum_{k=1}^3 |\Delta(\varepsilon_{i,T})| + |\Delta(\xi_{TPB,T})| \quad (4.1)$$

où  $\boldsymbol{x}$  est un vecteur de  $[0;+\infty[^3 \times [1;+\infty[^7 \subset \mathbb{R}^{10}$  qui contient l'ensemble des 10 paramètres du modèle

$$\boldsymbol{x} = (\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, b_1, b_2, b_3, \gamma_1, \gamma_2, \gamma_3, \theta) \quad (4.2)$$

et où  $\Delta(\varepsilon_{i,T})$  et  $\Delta(\xi_{TPB,T})$  sont respectivement les erreurs commises sur les fractions volumiques de chaque phase  $i = 1, 2, 3$  et sur la densité de TPB, pour les données réelles de la cellule oxyde-solide à l'instant  $T$ .

La figure 31 et le tableau 1 permettent de comparer les résultats obtenus après optimisation du modèle pour deux micro-structures réelles prises à des temps différents. En particulier, on peut constater que les erreurs commises sur les fractions volumiques et la densité de TPB sont très faibles. Néanmoins, nous verrons dans la partie suivante

Propriétés	Temps $T = 0$ h				Temps $T = 10700$ h			
	$\varepsilon_1$ (%)	$\varepsilon_2$ (%)	$\varepsilon_3$ (%)	$\xi_{TPB}$ ( $\mu\text{m}^{-2}$ )	$\varepsilon_1$ (%)	$\varepsilon_2$ (%)	$\varepsilon_3$ (%)	$\xi_{TPB}$ ( $\mu\text{m}^{-2}$ )
$\mu$ -structure réelle	20.91	47.57	31.51	2.15	19.29	48.89	31.82	2.05
$\mu$ -structure virtuelle	20.93	47.82	31.25	2.13	19.06	49.32	31.62	2.02
Erreur (%)	~ 0%	+0.5%	-1%	-1%	-1%	+1%	~ 0%	-1%

TABLE 1 – Comparaison des fractions volumiques et de la densité de TPB pour les micro-structures réelles et virtuelles aux temps  $T = 0\text{h}$  et  $T = 10700\text{h}$  calculées à partir de moyennes sur un ensemble de 16 réalisations.

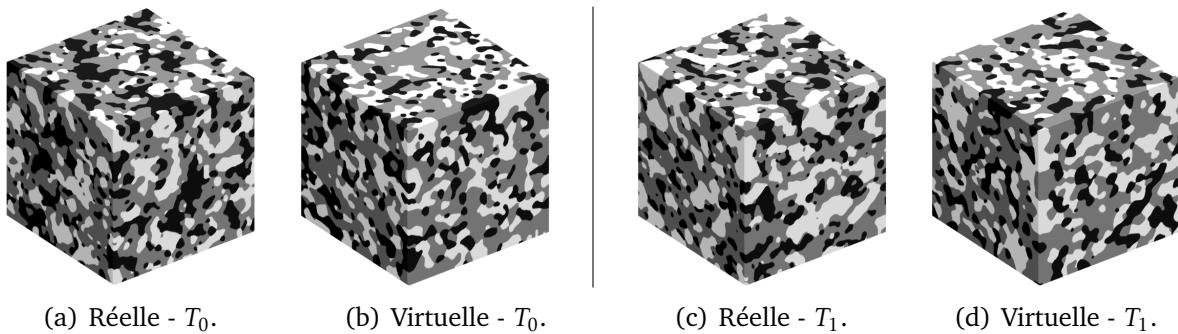


FIGURE 31 – Comparaison de micro-structures réelles et virtuelles à deux instants  $T_0 = 0\text{h}$  (a) et (b) et  $T_1 = 10700\text{h}$  (c) et (d).

qu'il n'en est pas nécessairement de même pour d'autres indicateurs tels que la surface spécifique qu'il conviendrait alors peut-être d'inclure dans la fonction de coût, quitte à lui adjoindre une certaine pondération.

En revanche, il faut nuancer ce bon résultat, en précisant qu'il semble que se contenter d'effectuer une moyenne de ces indicateurs sur 16 réalisations ne suffise pas et qu'il conviendrait d'augmenter ce nombre jusqu'à 64 réalisations, ou bien d'augmenter la taille du domaine à un volume  $V = [0; 300]^3$ , de sorte à réduire la variance. Néanmoins, nous avons préféré privilégier la rapidité d'exécution au détriment de la précision de nos résultats, ce qu'il nous place plus dans une démarche de preuve de concept à ce stade de nos travaux.

De même, on notera que nous avons fait le choix de ne considérer que des distributions de points parfaitement homogènes et isotropes pour la génération des sommets des graphes aléatoires, et par conséquent d'ignorer la possibilité d'introduire des distributions agrégées, comme présentées dans la section 2.5.3, ce qui permet de simplifier le problème, de limiter le nombre de paramètres et donc, de limiter le temps d'optimisation, au détriment, encore une fois, de la précision.

Enfin, on n'utilisera pas davantage la possibilité d'introduire des macro-pores, ou encore la possibilité d'utiliser des gradients de distance afin de modéliser l'interface de la cellule. Ces sujets pourront par conséquent être étudiés et développés plus avant par la suite.

#### 4.1.2 Validation

Une fois la phase d'optimisation terminée, il convient de valider nos résultats, non-seulement à l'aide des indicateurs ayant servi à l'optimisation, à savoir les fractions volumiques et la densité de TPB, mais également les surfaces spécifiques ou encore les proportions de phases connectées.

La surface spécifique  $S_p^i$  d'une phase  $i = 1, 2, 3$  correspond à la surface totale de la phase  $i$  divisée par le volume  $V$  du domaine. La proportion de phase connectée  $\delta_i$  correspond, quant à elle, et comme son nom l'indique, à la proportion du volume de la phase  $i$  entièrement connectée.

De plus, on calculera également pour chaque paramétrage différent la tortuosité géodésique  $\tau^{geo}$  définie dans [12] et [11] comme le rapport entre le chemin effectif  $l^{eff}$  et la longueur  $l$  du domaine  $V$ , et qui peut être vue comme une mesure de déviation par rapport au plus court chemin possible. En particulier, il est proposé par Neumann [12] d'utiliser l'algorithme de plus court chemin de Dijkstra [16] afin de la calculer.

Enfin, on s'intéressera également aux surfaces spécifiques d'interface  $S_p^{i,j}$ ,  $i, j = 1, 2, 3$  et  $i \neq j$ , correspondant à la surface spécifique située exactement à l'interface entre les phases  $i$  et  $j$ .

Les tableaux 2 et 3 permettent de comparer les propriétés des micro-structures réelles et virtuelles pour des paramétrages correspondants aux temps respectifs  $T = 0\text{h}$  et  $T = 10700\text{h}$ .

En ce qui concerne les fractions volumiques et la densité de TPB, les résultats sont nécessairement identiques à ceux présents dans le tableau 1. L'erreur commise est donc aussi bonne que le processus d'optimisation le permet. Augmenter le nombre d'itérations et calculer les indicateurs sur un plus grand nombre de réalisations permettra de fait d'augmenter la précision des résultats.

Concernant la proportion de phase connectée  $\delta$ , on peut constater que les résultats sont également excellents, ce qui tend à donner du crédit à notre démarche et à valider notre

Propriétés	Phase poreuse				Phase céramique (YSZ)			
	$S_p(\mu\text{m}^{-1})$	$\delta(\%)$	$\varepsilon(\%)$	$\tau^{\text{geo}}(-)$	$S_p(\mu\text{m}^{-1})$	$\delta(\%)$	$\varepsilon(\%)$	$\tau^{\text{geo}}(-)$
$\mu$ -structure réelle	1.16	87.9	23.91	7.67	2.05	99.8	47.57	1.93
$\mu$ -structure virtuelle	1.37	89.6	23.93	7.40	1.98	99.9	47.82	2.00
Erreur (%)	-19%	-2%	~ 0%	+3%	-3%	~ 0%	+1%	+3%
Phase métallique (Ni)								
Propriétés	$S_p(\mu\text{m}^{-1})$	$\delta(\%)$	$\varepsilon(\%)$	$\tau^{\text{geo}}(-)$	$\xi_{TPB}(\mu\text{m}^{-2})$	$S_p^{0,1}$	$S_p^{0,2}$	$S_p^{1,2}$
$\mu$ -structure réelle	1.35	96.1	28.51	4.37	2.15	0.92	0.22	1.11
$\mu$ -structure virtuelle	1.62	95.5	28.25	6.54	2.13	0.86	0.51	1.10
Erreur (%)	+20%	+1%	-1%	+50%	-1%	-6%	+125%	-1%

TABLE 2 – Comparaison des propriétés des micro-structures réelles et virtuelles au temps  $T = 0\text{h}$  calculées à partir de moyennes sur un ensemble de 16 réalisations.

Propriétés	Phase poreuse				Phase céramique (YSZ)			
	$S_p(\mu\text{m}^{-1})$	$\delta(\%)$	$\varepsilon(\%)$	$\tau^{\text{geo}}(-)$	$S_p(\mu\text{m}^{-1})$	$\delta(\%)$	$\varepsilon(\%)$	$\tau^{\text{geo}}(-)$
$\mu$ -structure réelle	1.06	69.4	19.29	17.6	2.06	99.8	48.89	1.84
$\mu$ -structure virtuelle	1.24	71.6	19.06	20.8	1.89	99.9	49.32	2.02
Erreur (%)	+17%	-3%	-1%	-18%	-8%	~ 0%	+1%	-9%
Phase métallique (Ni)								
Propriétés	$S_p(\mu\text{m}^{-1})$	$\delta(\%)$	$\varepsilon(\%)$	$\tau^{\text{geo}}(-)$	$\xi_{TPB}(\mu\text{m}^{-2})$	$S_p^{0,1}$	$S_p^{0,2}$	$S_p^{1,2}$
$\mu$ -structure réelle	1.38	97.4	31.82	6.95	2.05	0.86	0.19	1.18
$\mu$ -structure virtuelle	1.63	95	31.62	4.72	2.02	0.74	0.49	1.13
Erreur (%)	+18%	+3%	~ 0%	+32%	-1%	-14%	+157%	-4%

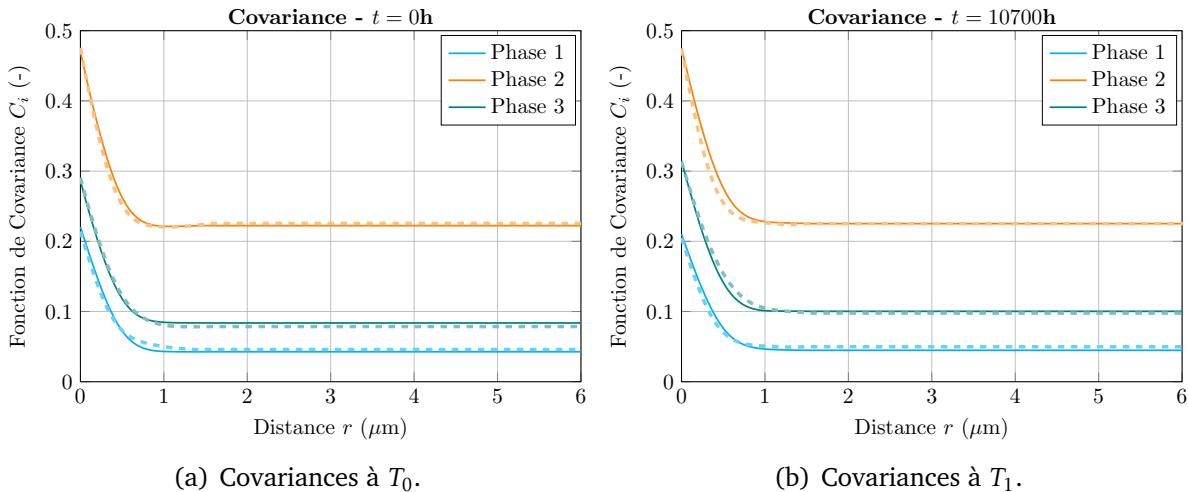
TABLE 3 – Comparaison des propriétés des micro-structures réelles et virtuelles au temps  $T = 10700\text{h}$  calculées à partir de moyennes sur un ensemble de 16 réalisations.

modèle. Pour autant, les résultats sont mitigés en ce qui concerne la tortuosité géodésique  $\tau^{\text{geo}}$ , la surface spécifique  $S_p$  et la surface spécifique d'interface  $S_p^{i,j}$ .

Dans tous les cas, on constatera que c'est la phase métallique, ou phase « 2 », qui pose le plus de problèmes, notamment pour ce qui est de la surface spécifique d'interface avec la phase poreuse. En effet, cette dernière est largement sur-évaluée par notre modèle, ce qui traduit le fait que la phase métallique est bien moins en contact avec la phase poreuse dans la micro-structure réelle que dans la micro-structure virtuelle générée par notre modèle.

Enfin, la figure 32 propose de comparer les fonctions de covariance, définies dans la section 1.1.2, de chacune des trois phases pour les micro-structures réelles et virtuelles à des instants  $T = 0\text{h}$  et  $T = 10700\text{h}$ .

On peut constater une correspondance plutôt bonne à vue d'œil. Néanmoins, de légers écarts sont clairement visibles, de même qu'un léger rebond, notamment pour ce qui est de la phase « 2 » de la structure réelle au temps  $T = 0\text{h}$ . Ces écarts peuvent par exemple s'expliquer par la nature hétérogène du milieu. Pour cette raison, il serait intéressant de poursuivre nos travaux en enrichissant notre modèle afin de prendre en compte la possible agrégation des sommets des graphes aléatoires permettant de générer la micro-structure.



**FIGURE 32** – Comparaison des fonctions de covariance  $C_i$  pour chacune des phases  $i = 1, 2, 3$  des micro-structures réelles et virtuelles à deux instants  $T_0 = 0\text{h}$  (a) et  $T_1 = 10700\text{h}$  (b). Les fonctions de covariance des micro-structures réelles sont indiquées en pointillés, et celles des micro-structures virtuelles en traits pleins. Les phases 1, 2 et 3 sont respectivement les phases poreuses, céramiques et métalliques.

De plus, d'après les équations (1.5) et (1.6) de la partie 1.1.2, nous ne sommes pas sans savoir que pour une fonction de covariance  $C_i(r)$  associée à une phase  $i = 1, 2, 3$ , on a

$$C_i(0) = \varepsilon_i \quad \text{et} \quad \lim_{r \rightarrow \infty} C_i(r) = \varepsilon_i^2 \quad (4.3)$$

et ce, uniquement dans des cas très particuliers, détaillés dans [13].

Ainsi, le fait que l'on ait

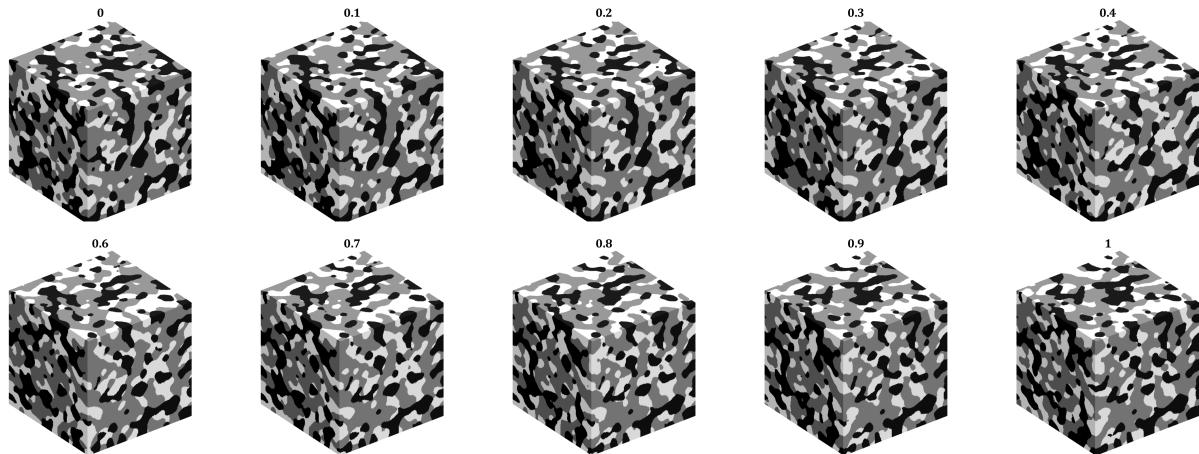
$$\lim_{r \rightarrow \infty} C_i(r) \neq \varepsilon_i^2 \quad (4.4)$$

est un indice de plus quant à l'hétérogénéité de la micro-structure, et un argument supplémentaire à faire valoir concernant l'utilisation de modèles de points non-homogènes tels que des modèles agrégés pour la génération des sommets des  $\beta$ -squelettes.

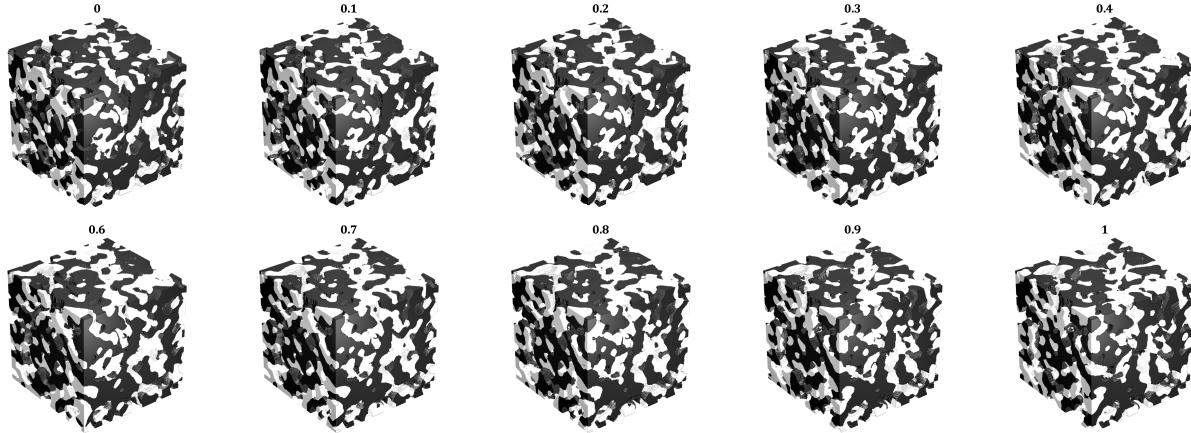
## 4.2 Interpolation de micro-structures

Une fois notre modèle validé dans les grandes lignes, de nombreux ajustements étant encore nécessaires afin de faire converger certains indicateurs vers leur valeur réelle, nous devons nous assurer du fait qu'il nous est possible d'effectuer une transformation quasi-continue entre deux états temporels différents d'une micro-structure simulée à l'aide des techniques d'association de graphes exposées dans la partie 3, et permettant en particulier de faire correspondre les trois paires de  $\beta$ -squelettes générées pour deux instants  $T$  différents, associées à chacune des phases de la micro-structure.

Pour ce faire, on commence par générer deux micro-structures, avec des paramètres ajustés afin de correspondre aux données réelles des instants  $T_0 = 0\text{h}$  et  $T_1 = 10700\text{h}$ . Afin de déformer le moins possible les phases poreuses et céramiques, la répartition des



**FIGURE 33 –** Évolution d'une micro-structure virtuelle le long d'un chemin géodésique entre deux instants  $t_0 = 0$  et  $t_1 = 1$  avec  $T = 10700 \times t$ .



**FIGURE 34** – Autre représentation de la figure 33. La phase poreuse est invisible, la phase céramique en noir et la phase métallique en blanc.

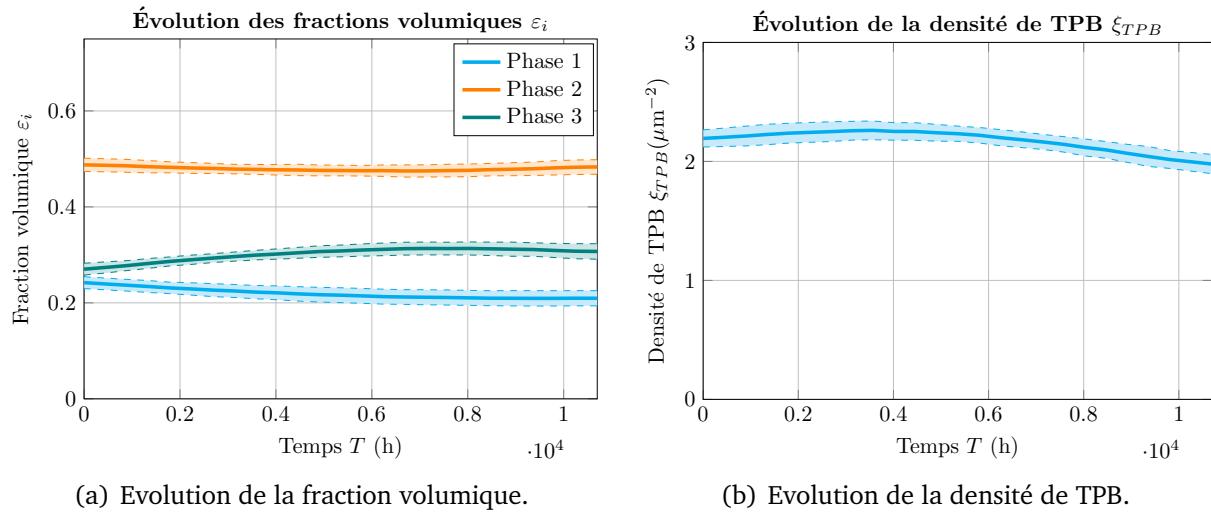
sommets des graphes étant homogène, on génère d'abord le graphe aléatoire de plus grande taille, c'est-à-dire ayant le plus de sommets, et on en extrait un sous graphe, afin de produire celui de plus petite taille. Cela permet de faire en sorte que les sommets des  $\beta$ -squelettes correspondant aux phases céramiques et poreuses ne se déplacent pas, ce qui semble mieux correspondre à la réalité. En revanche, on génère bien deux squelettes indépendants pour la phase métallique, cette dernière étant mobile.

Ensuite, il ne reste plus qu'à faire correspondre chacune des paires de graphes associées aux trois différentes phases, et à considérer le chemin géodésique correspondant. On établira de la même manière un chemin géodésique entre les différents paramètres du modèle, à savoir les paramètres de distance  $\gamma_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ , ainsi que le paramètre de lissage  $\theta$ .

La figure 33 permet d'illustrer le résultat obtenu, et l'on peut constater une légère coalescence de la phase métallique (en blanc) au fil du temps, ainsi qu'une évolution spatiale moindre de la phase poreuse, et surtout de la phase céramique.

Afin de s'assurer du fait que cette évolution de la micro-structure le long du chemin géodésique trouvé se fait de manière la plus naturelle possible, on peut observer l'évolution temporelle de certains indicateurs, comme par exemple ceux que nous avons utilisés lors de l'optimisation du modèle, à savoir les fractions volumiques  $\varepsilon_i$ ,  $i = 1, 2, 3$  et la densité de TPB  $\xi_{\text{TPB}}$ .

La figure 35 permet d'illustrer l'évolution des fractions volumiques de chacune des phases 35(a) et celle de la densité de TPB 35(b). On peut constater que les courbes moyennes obtenues sont particulièrement lisses, et apprécier le fait que l'écart-type, re-



**FIGURE 35** – Illustration de l'évolution des fractions volumiques (a) et de la densité de TPB (b) le long d'un chemin géodésique  $[\theta(t)]$  avec  $t \in [0; 1]$  et  $T = 10700 \times t$  entre deux micro-structures virtuelles dont les propriétés ont été ajustées pour correspondre à celles des micro-structures réelles aux mêmes instants. On calcule les propriétés de la micro-structure sur 25 points du chemin, et on génère 16 réalisations en chaque points. Les courbes en trait plein correspondent aux moyennes de l'ensemble des réalisations et les courbes en pointillés indiquent la valeur de l'écart-type.

présenté en pointillé, soit relativement faible lorsque l'on le rapporte aux nombre de réalisations effectuées.

En effet, il convient de moyenner ces indicateurs en effectuant un grand nombre de réalisations, à savoir 16 dans ce cas très précis, sans quoi les courbes obtenues seraient bien moins lisses et laisseraient apparaître de fortes irrégularités. Néanmoins, le temps nécessaire pour obtenir ces résultats est de l'ordre de quelques minutes.

On remarquera enfin que l'étape la plus coûteuse en temps de calcul est la mise en correspondance des différents graphes aléatoires. Néanmoins, il n'est nécessaire de la réaliser qu'une unique fois, ce qui permet d'effectuer toutes les mesures que l'on souhaite autant de fois que nécessaire, et à n'importe quel instant, une fois un chemin géodésique établi entre les deux états de la micro-structure.

### 4.3 Perspectives

Comme le démontrent les tableaux 2 et 3, l'optimisation sur les fractions volumiques et la densité de TPB permet d'obtenir des résultats encourageants mais par encore totalement satisfaisants, notamment en ce qui concerne les surfaces spécifiques et les surfaces

spécifiques d'interface impliquant la phase métallique. Nous nous proposons maintenant d'établir une liste non-exhaustive des pistes qu'il convient d'explorer en priorité afin d'améliorer la qualité de notre modèle.

1. La fonction de coût  $f_t$  pourrait être redéfinie afin de prendre en compte d'autres paramètres, comme par exemple les surfaces spécifiques ou encore la turtuosité géodésique, bien que cette dernière soit extrêmement coûteuse en temps de calcul. Ainsi, on aurait

$$f_T(\mathbf{x}) = \sum_{k=1}^3 \omega_i |\Delta(\varepsilon_{i,T})| + \sum_{k=1}^3 \omega_{i+3} |\Delta(S_{p_i,T})| + \sum_{k=1}^3 \omega_{i+6} |\Delta(\tau_i^{\text{geo}})| + \omega_{10} |\Delta(\xi_{\text{TPB},T})| \quad (4.5)$$

avec les  $\omega_i$ ,  $i = 1..10$  une pondération affectée à chacun des termes, telle que l'on ait  $\sum \omega_i = 1$ .

Par ailleurs, la redéfinition de cette fonction de coût est d'autant plus nécessaire qu'elle ne permet pas, à l'aide des simples fractions volumiques et de la densité de TPB, de proposer un minimum global. En effet, il existe de nombreuses microstructures ayant les mêmes fractions volumiques et densité de TPB, et pour autant, ayant des surfaces spécifiques extrêmement différentes.

2. Nous avons utilisé des graphes aléatoires dont la répartition spatiale des sommets était uniforme, le milieu étant supposé isotrope. Pourtant, la vue de la microstructure réelle, l'allure des fonctions de covariance, et le fait qu'il existe un phénomène de coalescence de la phase métallique doivent au minimum nous interroger quant à la validité de cette hypothèse. De fait, il serait judicieux d'enrichir le modèle afin de pouvoir contrôler la répartition spatiale des points. Pour ce faire, nous proposons d'utiliser des processus de Neyman-Scott [13] ou des processus de Gibbs afin de pouvoir générer des ensembles aléatoires de points plus ou moins agrégés. L'une ou l'autre de ces méthodes entraîne alors une addition de deux paramètres supplémentaires au minimum par phase qui en bénéficiera.

Des tests préliminaires d'optimisation en prenant en compte la surface spécifique et avec un processus de Gibbs agrégé pour les sommets du graphe aléatoire correspondant à la phase métallique ont par ailleurs permis d'obtenir une erreur de +0.18% avec le modèle agrégé contre +20% avec le modèle actuel sur la surface spécifique  $S_p^2$  et une erreur de +73.79% contre +125% pour la surface spécifique d'interface  $S_p^{0,2}$ , au temps  $T = 0h$ , ce qui laisse à penser qu'il s'agit là d'une idée à creuser.

3. Enfin, on pourrait également considérer le fait d'utiliser plusieurs graphes aléatoires aux caractéristiques différentes et associés à une même phase, à l'instar de

ce que nous proposons pour la génération de macro-pores (cf. figure 24). En effet, les processus de points agrégés tels que Neyman-Scott ou Gibbs tendent peut-être à générer de trop gros clusters et une forte hétérogénéité spatiale. En couplant ces processus de points à des processus plus homogènes, tels que les modèles Booléen que nous utilisons actuellement, et en affectant un poids à la densité de chacun de ces ensembles aléatoires, il peut être envisageable de se rapprocher davantage des caractéristiques de la micro-structure réelle.

En plus de ces quelques pistes, le lecteur éclairé aura remarqué l'absence, lors de la phase de validation, d'indicateurs classiques tels que la PSD (*Pore Size Distribution*), le facteur de structure ou la constrictivité. Pour des raisons de contraintes de temps, il n'a pas été possible d'inclure les résultats obtenus avec ces derniers au sein de ce rapport, mais il s'agit bien évidemment de critères importants à prendre en compte lors de la validation de notre modèle à l'avenir.

## Conclusion

Durant ce stage, il nous aura été possible de mettre en évidence la possibilité d'utiliser des  $\beta$ -squelettes, ou graphes aléatoires, pour modéliser des micro-structures de cellules oxyde-solide. De plus, en utilisant les techniques de correspondance de graphes (*graph matching*), nous avons également pu montrer comment établir un chemin géodésique entre deux états temporels différents d'un même modèle de micro-structure, dans le but d'être capable de suivre son évolution à chaque instant, au travers notamment des indicateurs que sont la fraction volumique et la densité de TPB.

Bien entendu, il est possible de suivre l'évolution de l'intégralité des paramètres qu'il est possible de calculer sur une image 3D, comme les surfaces spécifiques ou la tortuosité. Il s'agit d'ailleurs de propriétés très importantes de la micro-structure, que nous avons pris soin d'utiliser lors de l'étape de validation de notre modèle.

Cette étape de validation aura quant à elle permis de mettre en évidence le caractère prometteur de la méthode, tout en montrant les limites des hypothèses que nous avions formulées de manière parfois implicite, comme le caractère homogène de la structure, et la possibilité d'utiliser des modèles Booléens lors de la génération des sommets des graphes aléatoires.

Pour cette raison, nous avons proposé plusieurs pistes d'intérêt, visant à faire converger le modèle ajusté avec les données réelles, de part l'utilisation de modèles non-Booléens, tels que des modèles agrégés de Gibbs, et il nous a été possible de lancer quelques simulations, afin de nous conforter dans l'idée qu'il pourrait s'agir d'une des solutions possibles.

On ne peut que s'accorder sur le fait que le travail effectué jusqu'à présent se définit plutôt comme une « preuve de concept » d'un modèle qu'il convient d'améliorer et d'ajuster plus avant. Néanmoins, il nous semble que la possibilité de mettre au point un modèle de micro-structures triphasées à évolution temporelle à base de  $\beta$ -squelettes est à présent un fait établi.

*Nous tenons à remercier Johan Debayle pour nous avoir encadré durant ce stage et nous avoir prodigué de précieux conseils.*

## Références

- [1] A. Auger and N. Hansen. A restart cma evolution strategy with increasing population size. *Proc. IEEE Congress Evolutionary Computation*, 2 :1769–1776, 01 2005. (Page 43.)
- [2] A. Auger and N. Hansen. Tutorial cma-es : evolution strategies and covariance matrix adaptation. 01 2012. (Page 43.)
- [3] S. Chiu, D. Stoyan, W. Kendall, and J. Mecke. *Stochastic Geometry and Its Applications*. Wiley Series in Probability and Statistics. Wiley, 2013. (Page 28.)
- [4] P. F. Felzenszwalb and D. P. Huttenlocher. Distance transforms of sampled functions. *Theory of Computing*, 8(19) :415–428, 2012. (Page 19.)
- [5] M. Frank and P. Wolfe. An algorithm for quadratic programming. *Naval Research Logistics Quarterly*, 3(1-2) :95–110, 1956. (Page 32.)
- [6] X. Guo, A. B. Bal, T. Needham, and A. Srivastava. Statistical shape analysis of brain arterial networks (BAN). *CoRR*, abs/2007.04793, 2020. (Page 11.)
- [7] X. Guo, A. Srivastava, and S. Sarkar. A quotient space formulation for statistical analysis of graphical data. *CoRR*, abs/1909.12907, 2019. (Pages 1, 11, 30, 31, 32, and 34.)
- [8] D. G. Kirkpatrick and J. D. Radke. A framework for computational morphology. In G. T. TOUSSAINT, editor, *Computational Geometry*, volume 2 of *Machine Intelligence and Pattern Recognition*, pages 217–248. North-Holland, 1985. (Pages 10, 16, and 17.)
- [9] Y. Lei, T.-L. Cheng, H. Abernathy, W. Epting, T. Kalapos, G. Hackett, and Y. Wen. Phase field simulation of anode microstructure evolution of solid oxide fuel cell through ni(oh)2 diffusion. *Journal of Power Sources*, 482 :228971, 2021. (Pages 12 and 13.)
- [10] H. Moussaoui, J. Debayle, Y. Gavet, P. Cloetens, and J. Laurencin. Particle-based model for functional and diffusion layers of solid oxide cells electrodes. *Powder Technology*, 367 :67–81, 2020. (Pages 1, 2, 3, 4, and 5.)
- [11] H. Moussaoui, J. Laurencin, Y. Gavet, G. Delette, M. Hubert, P. Cloetens, T. Le Bihan, and J. Debayle. Stochastic geometrical modeling of solid oxide cells electrodes validated on 3d reconstructions. *Computational Materials Science*, 143 :262–276, 2018. (Pages 1, 5, 7, 8, and 44.)

- [12] M. Neumann, J. Staněk, O. M. Pecho, L. Holzer, V. Beneš, and V. Schmidt. Stochastic 3d modeling of complex three-phase microstructures in sofc-electrodes with completely connected phases. *Computational Materials Science*, 118 :353–364, 2016.  
(Pages 1, 10, 16, 17, 18, 21, 23, 25, and 44.)
- [13] Ángeles M Gallego and A. Simó. Random closed set models : Estimating and simulating binary images. *Image Analysis & Stereology*, 22(3) :133–145, 2011.  
(Pages 18, 28, 47, and 50.)
- [14] B. Prifling, M. Ademmer, F. Single, O. Benevolenski, A. Hilger, M. Osenberg, I. Manke, and V. Schmidt. Stochastic 3d microstructure modeling of anodes in lithium-ion batteries with a particular focus on local heterogeneity. *Computational Materials Science*, 192 :110354, 2021.  
(Page 8.)
- [15] T. Takaki. Phase-field modeling and simulations of dendrite growth. *ISIJ International*, 54(2) :437–444, 2014.  
(Page 12.)
- [16] K. Thulasiraman and M. N. Swamy. *Graphs : theory and algorithms*. John Wiley & Sons, 2011.  
(Page 44.)
- [17] J. T. Vogelstein, J. M. Conroy, V. Lyzinski, L. J. Podrazik, S. G. Kratzer, E. T. Harley, D. E. Fishkind, R. J. Vogelstein, and C. E. Priebe. Fast approximate quadratic programming for graph matching. *PLOS ONE*, 10(4) :1–17, 04 2015.  
(Pages 1, 11, 32, and 34.)
- [18] D. Westhoff, I. Manke, and V. Schmidt. Generation of virtual lithium-ion battery electrode microstructures based on spatial stochastic modeling. *Computational Materials Science*, 151 :53–64, 2018.  
(Pages 9 and 10.)