

# Séparation de sources acoustiques de synthèses mécano-chimiques par factorisation de matrices non-négatives

Supervision : Pierre Granjon<sup>†</sup>, César Leroy<sup>‡</sup>, Danielle Laurencin<sup>‡</sup>, Thomas-Xavier Métro<sup>‡</sup>  
<sup>†</sup>: GIPSA-Lab, Grenoble, France, <sup>‡</sup>: ICGM, Montpellier, France.  
Email : pierre.granjon@gipsa-lab.fr

## Contexte

La mécano-chimie est une voie de synthèse qui connaît un nombre croissant d'applications [1]. Du fait qu'elle ne nécessite pas ou très peu de solvants, elle s'est répandue au cours des dernières années comme une alternative « verte » aux synthèses conventionnelles en solution. Parmi les méthodes de mécano-chimie, l'utilisation du broyage à billes est l'une des approches les plus courantes. Cependant, les phénomènes ayant lieu lors de ces synthèses entre réactifs solides sont encore majoritairement peu compris. Dans le cas du broyage à billes, cela est principalement dû à l'environnement opaque et fermé des réacteurs de broyage dans lesquels se déroulent les réactions qui sont généralement en acier inoxydable. L'information visuelle à laquelle les chimistes ont souvent recours dans des synthèses en solution réalisées dans une verrerie classique est donc perdue.

Dans une étude publiée début 2022 [2], le groupe de recherche de l'ICGM impliqué dans ce stage a montré que le suivi acoustique lors du broyage à billes permettait d'accéder à diverses informations. La figure 1 illustre une expérimentation réalisée dans le cadre de cette étude ainsi qu'un exemple de spectrogramme du signal acoustique enregistré. Les changements spectraux qui y apparaissent ont été partiellement reliés à la nature du mouvement des billes, à la nature du mélange ou encore à la présence de transformations chimiques, ce qui constitue une réelle avancée dans l'obtention d'informations sur l'évolution du milieu à l'intérieur du bol de broyage.

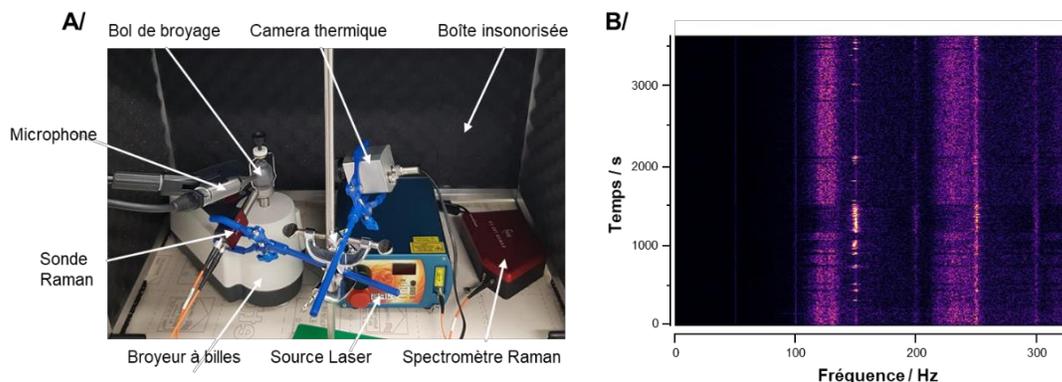


FIGURE 1 – A/ Montage d'analyse operando. B/ Spectrogramme du signal acoustique correspondant.

Toutefois, de nombreuses questions émergent de cette étude préliminaire : quels sont les différents mouvements des billes que l'on peut identifier et quantifier à l'aide du signal acoustique, quelle est l'influence de la texture et des propriétés physiques des composés broyés sur ce signal, ...

Leur apporter des réponses nécessite d'employer des méthodes avancées de traitement de données acoustiques permettant d'identifier, de quantifier et si possible de séparer les différentes composantes du signal acoustique mesuré, ce qui constitue le travail central de ce stage.

## Objectifs et travail attendu

L'objectif de ce stage est d'implanter et d'évaluer les apports des méthodes de factorisation de matrices non-négatives (NMF - nonnegative matrix factorization) [3] appliquées à des représentations temps-fréquence dans le cadre du suivi acoustique de synthèses mécano-chimiques.

L'approche envisagée comporte donc deux étapes principales. Dans un premier temps, les non-stationnarités présentes dans le signal acoustique seront analysées à l'aide de représentations temps-fréquence adaptées. L'objectif est de réaliser une analyse fine du contenu de ce signal permettant de faire le lien avec les mouvements des billes et l'état des matériaux dans le broyeur. Dans un second temps, des méthodes de type NMF seront appliquées aux représentations temps-fréquence précédentes. En effet, elles permettent sous certaines hypothèses assez générales de quantifier automatiquement l'évolution temporelle des composantes constituant le signal analysé. On comparera en particulier les résultats obtenus par des méthodes basées sur une approche non-supervisée, semi-supervisée, et supervisée [4]. On pourra également envisager d'étendre cette approche à des mesures multicapteurs à l'aide de méthodes applicables à des tenseurs de données [5].

Une fois estimée, l'évolution des composantes constitutives du signal acoustique durant une synthèse mécano-chimique pourra être utilisée pour obtenir des informations plus précises sur l'évolution des matériaux contenus dans le broyeur. En complément du signal acoustique, on pourra pour cela s'aider d'un signal vidéo fourni par une caméra rapide donnant accès dans certaines conditions expérimentales aux mouvements des billes dans le broyeur, ainsi que d'un signal de température fourni par une caméra thermique donnant accès à la température de surface du broyeur.

Les traitements nécessaires seront développés sous Python.

L'organisme d'accueil administratif de ce stage est le laboratoire **ICGM** de l'Université de Montpellier, et il s'effectuera au sein de l'équipe safe du **gipsa-Lab**. Quelques déplacements à Montpellier sont envisagés pour faciliter les échanges avec les différents chercheurs impliqués.

## Références

- [1] Do J.-L. and Friščić T., "Mechanochemistry: a force of synthesis", ACS Central Science 2017 3 (1), 13-19, doi: [10.1021/acscentsci.6b00277](https://doi.org/10.1021/acscentsci.6b00277).
- [2] Leroy C. *et al.*, "Operando acoustic analysis: a valuable method for investigating reaction mechanisms in mechanochemistry", Chemical Science 2022 13 6328-6334, doi: [10.1039/D2SC01496C](https://doi.org/10.1039/D2SC01496C).
- [3] Févotte C., Bertin N., and Durrieu J.-L., "Nonnegative matrix factorization with the Itakura-Saito divergence with application to music analysis", Neural Computat. 2009 21 (3) 793-830, doi: [10.1162/neco.2008.04-08-771](https://doi.org/10.1162/neco.2008.04-08-771).
- [4] Smaragdis P., Raj B. and Shashanka M., "Supervised and semi-supervised separation of sounds from single-channel mixtures", International Conference on Independent Component Analysis and Signal Separation (Berlin, Heidelberg), Springer-Verlag, 2007, doi: [10.1007/978-3-540-74494-8\\_52](https://doi.org/10.1007/978-3-540-74494-8_52).
- [5] Yoshii K., Tomioka R., Mochihashi D. and Goto M., "Infinite positive semidefinite tensor factorization for source separation of mixture signals", Proceedings of the 30th International Conference on Machine Learning, Dasgupta and McAllester, 2013, url: <https://proceedings.mlr.press/v28/yoshii13.html>.

## Informations administratives

Organisme d'accueil : ICGM, Montpellier

Lieu : gipsa-lab / équipe safe

Durée : février-juillet 2024

Contacts : [pierre.granjon@grenoble-inp.fr](mailto:pierre.granjon@grenoble-inp.fr), [cesar.leroy@umontpellier.fr](mailto:cesar.leroy@umontpellier.fr)

Rémunération : gratifications de stage + prise en charge des déplacements



# Separation of acoustic sources from mechanochemical syntheses by non-negative matrix factorization

## Context and problem statement

Mechanochemistry is a synthesis method with a growing number of applications [1]. Because it requires little or no solvent, it has become increasingly popular in recent years as a “green” alternative to conventional solution synthesis. Among mechanochemical methods, the use of ball-milling is one of the most common approaches. However, the phenomena involved in these syntheses between solid reactants are still poorly understood. In the case of ball-milling, this is mainly due to the opaque, closed environment of the milling reactors in which the reactions take place, which are generally made of stainless steel. The visual information that chemists often rely on in solution syntheses carried out in conventional glassware is therefore lost.

In a recent study published in 2022 [2], the ICGM research group involved in this internship demonstrated that acoustic monitoring during ball-milling gives access to a variety of information. Figure 1 illustrates an experiment carried out as part of this study, together with an example of a spectrogram of the recorded acoustic signal. The spectral changes shown here have been partially linked to the nature of the ball movement, the nature of the mixture or the presence of chemical transformations, providing a real breakthrough in obtaining information on the evolution of the medium inside the milling reactor.

However, many questions emerge from this preliminary study : what are the different ball movements that can be identified and quantified using the acoustic signal, what is the influence of the texture and physical properties of the ground compounds on this signal, etc. Answering these questions requires the use of advanced acoustic data processing methods to identify, quantify, and if possible separate the various components of the measured acoustic signal, which is the focus of this internship.

## Objective and expected work

The aim of this internship is to implement and evaluate the contributions of nonnegative matrix factorization (NMF) methods [3] applied to time-frequency representations in the context of acoustic monitoring of mechanochemical syntheses. The proposed approach comprises two main stages. Firstly, the non-stationarities present in the acoustic signal will be analyzed using suitable time-frequency representations. The aim is to carry out a detailed analysis of the signal content, enabling a link to be made with the movement of the milling balls and the state of the materials in the reactor. Secondly, NMF-type methods will be applied to the above time-frequency representations. Under certain fairly general assumptions, they can automatically quantify the temporal evolution of the components making up the analyzed signal. In particular, we will compare the results obtained by methods based on an unsupervised, semi-supervised and supervised approach [4]. We may also consider extending this approach to multisensor measurements using methods applicable to data tensors [5].

Once estimated, the evolution of the components making up the acoustic signal during a mechanochemical synthesis can be used to obtain more precise information on the evolution of the materials contained in the mill. In addition to the acoustic signal, a video signal supplied by a high-speed camera can be used to monitor the movement of the balls in the mill under certain experimental conditions, and a temperature signal supplied by a thermal camera can be used to monitor the surface temperature of the mill.

The necessary processing will be developed in Python.

## Administrative informations

Host organization: **ICGM**, Montpellier

Localization: **gipsa-lab** / safe team

Duration: February - July 2024

Contacts: [pierre.granjon@grenoble-inp.fr](mailto:pierre.granjon@grenoble-inp.fr), [cesar.leroy@umontpellier.fr](mailto:cesar.leroy@umontpellier.fr)

Compensation: internship bonus + travel expenses to Montpellier

