



Analyse de la nature stochastique et modélisation interne des systèmes générant des comportements de type puissance

Vincent Tartaglione

► To cite this version:

Vincent Tartaglione. Analyse de la nature stochastique et modélisation interne des systèmes générant des comportements de type puissance. Automatique. Université de Bordeaux, 2022. Français. NNT : 2022BORD0341 . tel-03937503

HAL Id: tel-03937503

<https://theses.hal.science/tel-03937503>

Submitted on 13 Jan 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE PRÉSENTÉE
POUR OBTENIR LE GRADE DE
DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX
ECOLE DOCTORALE SCIENCES DE L'INGÉNIEUR

Spécialité Automatique, Productique, Signal et Image, Ingénierie cognitive

Par **Vincent TARTAGLIONE**

**Analyse de la nature stochastique et modélisation interne
des systèmes générant des comportements de type
puissance**

Sous la direction de : **Christophe FARGES**
et le co-encadrement de : **Jocelyn SABATIER**

Soutenue le 02 décembre 2022

Devant le jury composé de :

M. CRESSON Jacky	Professeur, Université de Pau et des Pays de l'Adour	Rapporteur
M. POINOT Thierry	Professeur, Université de Poitiers	Rapporteur & Président
Mme BONNET Catherine	Directrice de recherche, CentraleSupélec	Examinatrice
M. CHAMORRO Diego	Maître de Conférences, Université d'Évry-Val-d'Essonne	Examineur
Mme HALLIL-ABBAS Hamida	Maîtresse de Conférences, Université de Bordeaux	Examinatrice
M. FARGES Christophe	Maître de Conférences, Université de Bordeaux	Directeur
M. SABATIER Jocelyn	Professeur, Université de Bordeaux	Examineur

Analyse de la nature stochastique et modélisation interne des systèmes générant des comportements de type puissance

Résumé : Les comportements de type puissance correspondent à des dynamiques suivant une loi de puissance sur une certaine gamme de fréquence. Des dynamiques de ce type apparaissent dans de nombreux domaines tels que la physique, la chimie, la biologie, la géologie, la sociologie ou la finance. Très souvent, ces comportements sont capturés par des modèles faisant intervenir la dérivation non entière. Ces modèles sont en effet capables de rendre compte fidèlement et avec peu de paramètres du comportement entrée-sortie de différents systèmes présentant des comportements de type puissance. Cependant ces modèles ne sont pas toujours adaptés pour capturer le comportement interne et font apparaître certaines difficultés telles que celles liées à leur initialisation. Il s'agit donc dans ce travail de proposer des modèles complémentaires aux modèles non entiers pour la modélisation des systèmes générant des comportements de type puissance. Dans cet objectif, une revue sur l'origine de ces comportements est menée. Sur les bases de cette revue, plusieurs outils de modélisation sont proposés. Ces outils sont ensuite soumis à des validations expérimentales au moyen des simulations numériques de processus stochastiques ou en se basant sur de mesures issues de la littérature ou d'un banc d'essai mis en place dans le cadre de cette thèse.

Mots-clés : Modélisation, comportements de type puissance, mémoire longue, modèles non entiers, équations de Volterra, systèmes à retards distribués, équations de diffusion, modèles non linéaires

Analysis of the stochastic nature and internal modelling of systems generating power type behaviour

Abstract: Power-law type behaviours correspond to dynamics following a power law over a certain frequency range. Such dynamics appear in many fields such as physics, chemistry, biology, geology, sociology or finance. Very often, these behaviours are captured by models using fractional derivation. These models are indeed able to accurately account for the input-output behaviour of different systems with power-law like behaviours with few parameters. However, these models are not always suitable for capturing the internal behaviour, and some difficulties appear, such as those related to their initialisation. The aim of this work is therefore to propose complementary models to the fractional models for the modelling of systems generating power-law type behaviour. In this objective, a review on the origin of these behaviours is conducted. On the basis of this review, several modelling tools are proposed. These tools are then submitted to experimental validation by means of numerical simulations of stochastic processes or based on measurements from the literature or from a test bench set up in the framework of this thesis.

Keywords: Modelling, power-law type behaviours, long memory, fractional models, Volterra equations, distributed delay systems, diffusion equations, non-linear models

Unité de recherche

Laboratoire IMS, Université de Bordeaux, UMR CNRS 5218 – 351, Cours de la Libération, 33405 Talence Cedex, FRANCE

Remerciements

Ces travaux de thèse ont été réalisés au sein de l'équipe CRONE du groupe Automatique du laboratoire IMS de l'Université de Bordeaux.

Je voudrais particulièrement exprimer ma gratitude à mon directeur de thèse, Christophe Farges et à mon co-encadrant Jocelyn Sabatier, qui ont toujours été présents pour me guider et m'aiguillonner. Je les remercie pour toutes les connaissances qu'ils ont su me transmettre. Leur gentillesse et leur bienveillance m'ont permis d'effectuer cette thèse dans un cadre idéal. Ils m'ont permis de pouvoir être fier aujourd'hui du travail réalisé.

Je remercie Jacky Cresson et Thierry Poinot pour avoir accepté la charge de rapporter les travaux de thèse et pour les remarques pertinentes et constructives qu'ils m'ont adressées. Merci également aux examinateurs-ices, Catherine Bonnet, Diego Chamorro et Hamida Hallil-Abbas. Je les remercie tous pour l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de ce travail.

Pour m'avoir confié les TD de signaux aléatoires et pour ses précieux conseils, je remercie Audrey Giremus, ainsi que les équipes pédagogiques de l'institut Evering et de l'IUT GEII qui m'ont fait confiance pour les différents enseignements.

Je souhaite remercier tous les membres de l'équipe CRONE et tous les membres du laboratoire avec qui j'ai eu l'occasion de d'échanger. En particulier, je remercie Xavier Moreau, responsable du groupe Automatique et Pierre Melchior, responsable de l'équipe CRONE, pour leur accueil au sein du laboratoire et leur suivi. Je tiens à remercier Baptiste, Emna et Kendric avec qui j'ai partagé mon bureau en début de thèse et qui m'ont chaleureusement accueilli. Je remercie Mathieu, Tudor et Ghazi, pour les bons moments passés ensemble et qui ont toujours été de bon conseil. Merci également à Mélodie, Jean-François pour les pauses jeux de société et Salma pour les longues discussions que nous avons eues ces derniers mois de thèse.

Je remercie mes amis pour tous les moments que nous avons partagés, pour m'avoir permis de me vider la tête lorsque j'en avais besoin : Alex, J-L, Luc, Elie, J-F, Alice, Quentin, Tommy, Flo, Ju, Marc, Adri, Aid, Clem, Nono, Léa, Alex (bis), Valou, Lauraine, et Mozza.

Pour terminer, je remercie ma famille, qui m'a soutenu tout au long de ce travail et qui m'a toujours accompagné dans mes choix aussi bien personnels que professionnels. Je dédie ce mémoire à mes parents, mon frère et mes sœurs.

Table des matières

Introduction générale	1
1 Systèmes à mémoire longue	3
1.1 Introduction	4
1.2 Systèmes dynamiques et cinétiques d'évolution	4
1.2.1 Quelques concepts fondamentaux sur les dynamiques	5
1.2.2 Mémoire d'un système dynamique	6
1.3 Discussions sur l'origine des comportements de type puissance	8
1.3.1 Récursivité et comportements de type puissance	8
1.3.2 Fractalité et comportements de type puissance	12
1.3.3 Auto-similarité et comportements de type puissance	14
1.3.4 Criticalité auto-organisée et comportements de type puissance	16
1.4 Phénomènes produisant des comportements de types puissance	20
1.4.1 Diffusion	20
1.4.2 Adsorption	22
1.4.3 Agrégation et dépôts balistiques	24
1.4.4 Fragmentation	26
1.5 Conclusion	28
2 Des outils de modélisation dédiés aux phénomènes à mémoire longue de type puissance	29
2.1 Introduction	30
2.2 Généralités sur les modèles entiers	30
2.3 Modèles non-entiers et propriétés	31
2.3.1 Intégration non-entière	31
2.3.2 Dérivation non-entière	32
2.3.3 Caractérisation fréquentielle d'un dérivateur et d'un intégrateur d'ordre non-entier réel	33
2.3.4 Fonction de transfert non-entière	34
2.3.5 Pseudo représentation d'état	35
2.3.6 Représentation diffusive	35
2.3.7 Mise en évidence de différentes limitations	36
2.4 Équations de Volterra comme généralisation des modèles non-entiers	39
2.4.1 Différents noyaux pour les comportements à mémoire longue de type puissance	40
2.4.2 Méthode de détermination d'un noyau	44
2.4.3 Application à la modélisation d'une cellule lithium-ion	48
2.5 Modèles à retards distribués	52
2.5.1 Modèles à retards distribués présentant un comportement à mémoire longue de type puissance	53
2.5.2 Application à la modélisation de données réelles	57

2.6	Équations de diffusion à coefficients spatialement variables	58
2.7	Modèles non linéaires	61
2.7.1	Exemple du tas de sable	62
2.7.2	Généralisation du modèle (2.163)	63
2.8	Conclusion	66
3	Modélisation non linéaire des phénomènes d'adsorption et désorption	69
3.1	Introduction	70
3.2	Capteur à onde de Love	70
3.3	Adsorption Séquentielle Aléatoire (ASA)	74
3.3.1	Cas 2D	74
3.3.2	Cas fractal	80
3.4	Modélisation du dépôt de CO ₂	87
3.4.1	Modèles cinétiques existants pour modéliser l'adsorption et limitations .	88
3.4.2	Modèle affine en l'entrée	93
3.5	Conclusion	97
4	Modélisation à l'aide d'équations de diffusion de phénomènes d'absorption	99
4.1	Introduction	100
4.2	Mise en place et étude d'un banc d'essai de stockage d'hydrogène	100
4.2.1	Mise en place du banc d'essai de stockage d'hydrogène	100
4.2.2	Mise en évidence d'un comportement dynamique de type puissance . . .	102
4.2.3	Modèle non-entier	102
4.2.4	Modèle de diffusion à coefficients spatialement variables	104
4.3	Jeu de données d'absorption d'hydrogène issu de la littérature	107
4.3.1	Description du protocole expérimental et mise en évidence d'un compor- tement de type puissance	107
4.3.2	Modèle non entier	108
4.3.3	Modèle de diffusion avec isotherme	109
4.4	Conclusion	111
	Conclusion générale et perspectives	113
	A Démonstration du théorème 1	117
	B Exemple de calcul de la réponse impulsionnelle d'un intégrateur non entier	119
	C Démonstration du théorème 2	123
	D Génération des données d'ASA	127
	E Méthode d'optimisation et d'estimation des paramètres	129
	Bibliographie	137

Introduction générale

Un modèle est une représentation, une description d'un système réel. Cette représentation utilise des concepts, des méthodes, des théories mathématiques qui vont permettre de décrire, comprendre et prévoir l'évolution du système, d'en rendre compte le plus fidèlement possible. Afin d'être efficace, un modèle se doit d'une certaine simplicité, afin de permettre de développer des méthodes d'analyse et de synthèse, centrales dans le domaine de l'Automatique. Ainsi, il est nécessaire de trouver un compromis entre la précision du modèle et sa complexité. Son but est d'être utile et pour cela il doit être exploitable. En Automatique, on s'intéresse plus spécifiquement aux systèmes dynamiques et ainsi les modèles ici rencontrés sont des modèles dynamiques, ayant pour objectif de modéliser l'évolution temporelle du système ou phénomène en réponse à des conditions initiales ou à des sollicitations extérieures.

Idéalement, un modèle dynamique devra tenir compte des différentes caractéristiques du phénomène, bien que certaines approximations puissent être pertinentes. Le domaine de la modélisation est très vaste et il est possible de distinguer plusieurs classes de modèles en fonction de leurs caractéristiques : linéaires ou non linéaires, stochastiques (faisant intervenir des probabilités, et donc du hasard) des modèles déterministes (dont l'issue sera toujours la même en réponse à un même événement), invariant dans le temps ou non (si une translation temporelle sur l'entrée se retrouve à la sortie), etc. Se pose alors la question du choix de la classe de modèle à utiliser pour un problème de modélisation, question à laquelle on peut tenter de répondre en choisissant celui qui respecte au mieux la physique du système ou qui couvre au mieux le domaine sur lequel le système doit être représenté.

Une autre caractéristique que peut avoir un phénomène réside dans sa dépendance au passé. On parle alors de mémoire. Lorsque la dépendance au passé est forte, on parle de système à mémoire longue. Ces systèmes font apparaître des comportements de type puissance, ou fractionnaires, c'est-à-dire présentant des relaxations plus lentes que des exponentielles et précisément en $t^{-\nu}$. Cette thèse s'intéresse donc particulièrement à l'obtention de modèles pour les systèmes ayant ce type de comportement. On retrouve ces comportements dans des applications variées telles que des phénomènes de diffusion [49, 25], des phénomènes d'agrégation notamment de la croissance de cellules animales [4] et dans la cristallisation [113, 10, 90], dans les télécommunications avec notamment le trafic de données [66], etc.

De nos jours un lien implicite existe entre systèmes à comportement de type puissance (système d'origine thermique, biologique, etc.) et modèles non entiers, qui sont des modèles faisant intervenir un opérateur de dérivation non entière, dont le développement aurait démarré au 17^{ème} siècle avec G.W. Leibniz et l'Hospital, puis au 18^{ème}, avec L. Euler et Lagrange et 19^{ème} siècle avec N.H. Abel, Laplace, Riemann (voir [64] pour une brève histoire du calcul dit « fractionnaire »). En effet les modèles non entiers font également apparaître des comportements de type puissance, ce qui en fait des candidats intéressants en modélisation et ont conduit à de très nombreux développements ces 30 dernières années [70]. Cependant, si les modèles non entiers sont appropriés et efficaces pour représenter le comportement entrée-sortie de systèmes à mémoire longue, ils approximent peu leur comportement interne. En effet, de par les propriétés mathématiques de l'opérateur non entier, ces modèles font intervenir un état de dimension infinie et des paramètres qu'il est souvent difficile de rattacher à des grandeurs physiques du phénomène modélisé. L'om-

niprésence des comportements de type puissance nécessite de développer de nouveaux outils de modélisation plus adaptés à l'étude du comportement et des propriétés internes des systèmes à mémoire longue.

Ce travail de thèse, s'intéresse donc à trouver des alternatives aux modèles non entiers dédiés à la modélisation des systèmes au comportement de type puissance. Pour cela, une analyse approfondie des origines physiques des comportements de type puissance observés est tout d'abord effectuée. Cette analyse révèle l'origine stochastique, notamment avec les marches aléatoires, de ces comportements et le fort impact de la géométrie notamment les géométries fractales de nature aléatoire. Cette analyse révèle également qu'il est possible de déduire des modèles non linéaires de ces phénomènes stochastique produisant des comportements de type puissance. Les phénomènes stochastiques produisant ces comportements font intervenir une multitude d'agents (molécules, personnes,...) suivant des règles prédéfinies qui contraignent le comportement global. La réalisation de ce comportement global est effectuée avec des retards plus ou moins grands de la part de ces agents. Ces analyses justifient donc l'utilisation de modèles à retards distribués et des équations de Volterra pour la modélisation des comportements de type puissance. Ce sont ces différentes visions des phénomènes de type puissance qui sont exploitées dans ce travail de thèse pour déduire et appliquer des modèles capables de capter les comportements de type puissance.

Ainsi dans ce mémoire, le **chapitre 1** est consacré à la présentation des notions générales indispensables à l'étude des systèmes dynamiques et les notions qui permettent de caractériser le type particulier de systèmes qui nous intéressent ici, à savoir ceux qui engendrent des comportements de type puissance. Il présente également une discussion sur les origines des comportements de type puissance et pour cela passe en revue différentes propriétés, telles que la récursivité, la fractalité, la criticalité auto-organisée, l'autosimilarité. Enfin, des phénomènes exhibant des comportements de type puissance sont présentés : la diffusion, l'adsorption, l'aggrégation, la fragmentation.

Le **chapitre 2** propose quant à lui des outils de modélisation dédiés aux systèmes faisant apparaître des comportements de type puissance. Plusieurs types de modèles sont proposés, et leur capacité à générer des comportements de type puissance est mise en évidence. Les différents modèles proposés sont des modèles linéaires, tels que les modèles non entiers, des modèles basés sur les équations de Volterra, des modèles à retards distribués, des modèles basés sur des équations de diffusion à coefficients spatialement variables et également des modèles non linéaires. L'efficacité de certains de ces outils est étudiée au travers d'applications.

Le **chapitre 3** est plus particulièrement dédié à la modélisation d'un phénomène : l'adsorption. En s'appuyant sur la modélisation d'un système physique qu'est le capteur à ondes de Love, on montre que ce phénomène génère des comportements de type puissance. Ce phénomène est ensuite étudié via le phénomène idéalisé qu'est la random sequential adsorption (adsorption séquentielle aléatoire). Le phénomène physico-chimique d'adsorption est modélisé à partir de différentes données expérimentales, et à l'aide de plusieurs modèles non linéaires.

Le **chapitre 4** est lui consacré à la modélisation de phénomènes d'absorption, en se focalisant sur la dynamique de stockage d'hydrogène dans un milieu métallique et donc la diffusion puis la fixation d'agents dans ce milieu. À cet égard, un banc d'essai a été mis en place afin de générer des données expérimentales qui sont modélisées dans ce chapitre à l'aide de modèles basés sur des équations de diffusion. Dans un premier temps, pour la modélisation des données issues du banc d'essai, des équations de diffusion à coefficients spatialement variables sont proposées. Puis, sur un jeu de données issu de la littérature, un autre modèle de diffusion, non linéaire le concernant, est proposé.

Chapitre 1

Systèmes à mémoire longue

1.1	Introduction	4
1.2	Systèmes dynamiques et cinétiques d'évolution	4
1.2.1	Quelques concepts fondamentaux sur les dynamiques	5
1.2.2	Mémoire d'un système dynamique	6
1.3	Discussions sur l'origine des comportements de type puissance . . .	8
1.3.1	Récurtivité et comportements de type puissance	8
1.3.2	Fractalité et comportements de type puissance	12
1.3.3	Auto-similarité et comportements de type puissance	14
1.3.4	Criticalité auto-organisée et comportements de type puissance	16
1.4	Phénomènes produisant des comportements de types puissance . .	20
1.4.1	Diffusion	20
1.4.2	Adsorption	22
1.4.3	Agrégation et dépôts balistiques	24
1.4.4	Fragmentation	26
1.5	Conclusion	28

1.1 Introduction

Ce premier chapitre introduit des notions générales qui sont utilisées tout au long du manuscrit. Il est également l'occasion de s'interroger sur les origines physiques des comportements de type puissance qui sont plus largement étudiés et modélisés par la suite. Dans le cas des systèmes dynamiques, le concept de mémoire longue est tout d'abord défini. Pour la majorité des systèmes à mémoire longue, la dépendance du passé décroît selon une loi de puissance ou fractionnaire sur le temps. Des critères permettant la caractérisation de ce type de mémoire sont proposés. Ces comportements dynamiques à mémoire longue de type puissance sont par la suite désignés par « comportements de type puissance » par soucis de concision. On évitera par la suite le qualificatif « fractionnaire » pour éviter la confusion avec les modèles non entiers dits aussi fractionnaires, puisque comme le montrera la suite de la thèse, des modèles autres que fractionnaires peuvent être utilisés pour capter les comportements de type puissance. Les liens des ces comportements de type puissance avec plusieurs théories scientifiques apparues au cours du siècle dernier telles que la récursivité, la fractalité, la criticalité et l'auto-similarité sont discutés. Plusieurs phénomènes produisant des comportements de type puissance sont ensuite analysés. Pour chacun de ces phénomènes, une description est donnée et une modélisation mathématique idéalisée de nature stochastique est étudiée plus en détail. L'importance de la prise en compte de ces phénomènes et la nécessité de savoir modéliser les comportements de type puissance qui en découlent sont illustrés par l'analyse des domaines d'occurrence des ces phénomènes physiques.

1.2 Systèmes dynamiques et cinétiques d'évolution

Ce travail de thèse s'intéresse à la fois à des systèmes dynamiques et à des cinétiques d'évolution. Ces deux notions sont en effet liées.

En Mathématiques ou en Physique et en Ingénierie, un système dynamique est un système qui évolue au cours du temps de façon :

- causale, c'est-à-dire que son avenir ne dépend que de phénomènes du passé ou du présent ;
- déterministe, c'est-à-dire qu'à une « condition initiale » donnée à l'instant « présent » va correspondre à chaque instant ultérieur un et un seul état « futur » possible.

On exclut donc ici conventionnellement les systèmes intrinsèquement stochastiques (au sens bruité), qui relèvent de la théorie des probabilités.

D'un point de vue général et d'après le dictionnaire « Trésor de la langue française » [1], la cinétique désigne quant à elle ce qui se rapporte ou qui est dû au mouvement. Ainsi, dans le domaine de la Physique, la cinétique désigne l'étude du mouvement des corps, faisant appel aux notions de longueur, de temps et de masse. Dans le domaine de la Chimie, elle désigne l'étude du mécanisme et de la vitesse des réactions chimiques.

L'exemple du capteur à onde de Love qui sera analysé plus en détail plus loin est le parfait exemple de l'imbrication de ces notions. Ce type de capteur mesure la densité de gaz d'un environnement par la variation de la fréquence de vibration d'un élément mécanique du fait de son changement de masse induit par l'adsorption du gaz analysé par une surface sensible. Dans un tel système, la réponse du capteur évolue selon la cinétique d'adsorption du gaz, au sens chimique du terme, et selon la cinétique, au sens Physique du terme, de la partie mécanique qui porte la couche sensible. Le tout peut sans nul doute être vu comme un système dynamique. Le comportement futur de l'élément mécanique dépend de l'état passé et présent de la couche sensible et est unique en fonction de l'environnement de la couche sensible.

1.2.1 Quelques concepts fondamentaux sur les dynamiques

D'un point de vue entrée-sortie un système peut-être schématisé tel qu'indiqué sur la figure 1.1, qui à une entrée (ou un ensemble d'entrées) donnée fait correspondre une sortie (ou un ensemble de sorties).



FIGURE 1.1: Vision entrée-sortie d'un système

Pour une condition initiale donnée, lorsque la sortie en réponse à une combinaison linéaire d'entrées élémentaires peut être représentée comme une combinaison linéaire des sorties élémentaires correspondantes, on parle de système linéaire.

Une caractérisation du principe de linéarité est donnée dans la propriété qui suit.

Propriété 1 (Linéarité). *Soit $y_i(t)$ la sortie d'un modèle en réponse à une entrée $u_i(t)$. Le modèle est dit linéaire si, pour une combinaison linéaire d'entrées :*

$$u(t) = \sum_i \alpha_i u_i(t), \quad \alpha_i \in \mathbb{R}, \quad (1.1)$$

la réponse $y(t)$ est une combinaison linéaire des réponses élémentaires à chacune des entrées appliquées individuellement :

$$y(t) = \sum_i \alpha_i y_i(t). \quad (1.2)$$

Remarque 1. *En pratique, un grand nombre de systèmes physique présentent des non linéarités. Cependant, il est possible dans certains cas de négliger ces non linéarités de manière locale, en linéarisant le système autour de points d'équilibre. On peut alors engendrer un système linéaire ayant un comportement représentatif autour de ces points d'équilibre.*

Afin notamment de décrire un système dynamique, on peut utiliser la notion d'état.

Définition 1 (État d'un système). *L'état $x(t)$ d'un système contient le nombre minimal de variables telles que, si pour $t = t_0$, $x(t_0)$ est connu, alors $y(t_1)$ et $x(t_1)$ peuvent être déterminés de manière unique pour tout $t_1 \geq t_0$ si $u(t)$ est connu sur l'intervalle $[t_0, t_1]$.*

Cette notion d'état traduit l'aspect déterministe des systèmes dynamiques : à une condition initiale donnée $x(t_0)$, correspond un unique état $x(t_1)$ pour un instant t_1 ultérieur. Un second aspect des systèmes dynamiques est leur causalité : l'état $x(t_1)$ dépend uniquement de $x(t_0)$ et $u(t)$ sur $[t_0, t_1]$.

Définition 2 (Système stationnaire). *Soient $\mathcal{S}$ un système dynamique, $y(t)$ sa sortie, $u(t)$ son entrée et $x(t)$ son état. Le système $\mathcal{S}$ est dit « invariant » ou « stationnaire », si pour tout $\gamma \in \mathbb{R}$, un décalage γ sur l'entrée induit un décalage γ sur la sortie : $u(t + \gamma)$ induit une sortie $y(t + \gamma)$.*

Enfin, les deux notions définies ci-dessous seront utilisées par la suite pour caractériser les comportements de type puissance.

Définition 3 (Autocorrélation). On appelle « fonction d'autocorrélation » du signal continu $y(t)$, la fonction $\rho_y : \mathbb{R} \mapsto \mathbb{R}$, qui pour tout réel τ , est donnée par le produit de convolution de y avec lui-même :

$$\rho_y(\tau) = (y * y)(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} y(t)y(t + \tau) dt. \quad (1.3)$$

Définition 4 (Densité spectrale de puissance). On appelle « densité spectrale de puissance » du signal $y(t)$, la fonction f_y donnée par

$$f_y(\omega) = \lim_{T \rightarrow +\infty} \frac{\mathbb{E}[|\widehat{y_T}(\omega)|^2]}{2T}, \quad (1.4)$$

où

$$\widehat{y_T}(\omega) = \int_0^T y(t) e^{-2i\pi\omega t} dt$$

est la transformée de Fourier du signal $y(t)$ seulement sur l'intervalle fini $[0, T]$.

Pour un signal stationnaire, le théorème de Wiener-Khintchine permet d'exprimer f_y par la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation du signal $y(t)$:

$$f_y(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_y(t) e^{-2i\pi\omega t} dt. \quad (1.5)$$

1.2.2 Mémoire d'un système dynamique

Le concept de mémoire est étudié dans la théorie des probabilités, et plus spécifiquement dans l'étude des processus stochastiques [15] et la statistique [14].

La mémoire caractérise la manière dont le signal est lié à son passé (ce qui peut se traduire en termes d'autocorrélation ou d'autocovariance). On dira en particulier, qu'il est à **mémoire longue** si la corrélation (ou la dépendance) décroît plus lentement qu'une exponentielle, typiquement un comportement de type puissance. Cette idée peut s'étendre aux systèmes dynamiques comme le montrent les développements qui suivent.

Définition 5 (Fonction à variation lente [15]). Une fonction continue (ou plus généralement, mesurable) $L : \mathbb{R}_+ \mapsto \mathbb{R}_+$ est appelée « fonction variant lentement en l'infini » (ou « fonction à variation lente en l'infini ») au sens de Karamata si pour tout $\lambda > 0$,

$$L(\lambda x) \sim L(x), \quad x \rightarrow +\infty.$$

Elle est dite « variant lentement en l'origine » si $\tilde{L}(x) = L(x^{-1})$ varie lentement en l'infini.

Définition 6 (Mémoire longue [15]). Soit $y(t)$ ($t \in \mathbb{R}$) un signal stationnaire de fonction d'autocorrélation $\rho_y(\tau)$ et de densité spectrale $f_y(\omega)$ ($\omega \in \mathbb{R}$). Alors $y(t)$ est dit à « mémoire longue » s'il existe $\nu \in [0, \frac{1}{2}]$ tel que

$$\rho_y(\tau) = L_\gamma(\tau)\tau^{2\nu-1}, \quad (1.6)$$

lorsque $\tau \rightarrow +\infty$, ou

$$f_y(\omega) = L_f(\omega)|\omega|^{-2\nu}, \quad (1.7)$$

lorsque $\omega \rightarrow 0$, et où L_γ et L_f sont des fonctions à variation lente en l'infini et en l'origine respectivement.

Pour le cas des systèmes linéaires invariants (en anglais, *LTI : Linear Time-Invariant*), on a le théorème suivant, dont une démonstration est donnée dans [100] et est rappelée dans l'annexe A.

Théorème 1. *Un système LTI à mémoire longue de type puissance est un système possédant l'une des trois assertions équivalentes suivantes dans une gamme de fréquence bornée :*

1. *Sa réponse impulsionnelle $h(t)$ décroît lentement par rapport au temps :*

$$h(t) = \frac{K_t}{t^{1-\nu}} \mathcal{H}(t), \quad 0 < \nu < \frac{1}{2}, \quad (1.8)$$

où $K_t \in \mathbb{R}$, $\mathcal{H}(\cdot)$ est la fonction de Heaviside.

2. *Pour une entrée $u(t)$ de type bruit blanc, de variance σ , sa fonction d'autocorrélation est de la forme :*

$$R_y(\zeta) = \frac{\sigma K_t^2 4^{-\nu} \Gamma(\nu) \Gamma(\frac{1}{2} - \nu)}{\sqrt{\pi}} \zeta^{2\nu-1}, \quad (1.9)$$

où $K_t \in \mathbb{R}$, $\Gamma(\cdot)$ est la fonction Gamma d'Euler.

3. *Pour une entrée $u(t)$ de type bruit blanc, de variance σ , sa densité spectrale de puissance est de la forme :*

$$S_y(\omega) = \frac{\sigma K_\omega^2}{\omega^{2\nu}}, \quad (1.10)$$

où $K_\omega \in \mathbb{R}$.

Notons que dans le cas des définitions 6 et 1, l'ordre ν est compris entre 0 et $\frac{1}{2}$ car au delà de cet intervalle, l'autocorrélation diverge. Or, certains phénomènes peuvent avoir un comportement similaire à ceux vérifiant la définition 6 ou 1 mais avec un ordre non inclus dans l'intervalle $[0, \frac{1}{2}]$. Ce comportement se retrouve avec la réponse impulsionnelle, qui traduit l'effet à long terme d'une impulsion. On généralisera alors la notion de mémoire longue à des exposants $\nu \in]0, 1[$ par la définition qui suit.

Définition 7. *Un système à mémoire longue est un système dont la réponse impulsionnelle se comporte comme une loi de puissance sur les temps longs :*

$$h_\infty - h(t) \sim \frac{K_t}{t^{1-\nu}} \mathcal{H}(t), \quad 0 < \nu < 1, \quad (1.11)$$

où $h_\infty = \lim_{t \rightarrow \infty} h(t)$ et $K_t \in \mathbb{R}$.

À titre d'exemple, considérons la fonction temporelle suivante :

$$\eta_\nu(t) = C_1 \left(\frac{\omega_{min}^\nu}{\Gamma(\nu)} t^{\nu-1} e^{-\omega_{min} t} - \frac{\omega_l^\nu}{\Gamma(\nu)} t^{\nu-1} e^{-\omega_{max} t} + \omega_{min}^\nu \omega_{max}^{1-\nu} e^{-\omega_{max} t} \right), \quad (1.12)$$

pour tout $t \in \mathbb{R}_+$, avec $\nu \in \mathbb{R}_+^*$. Cette fonction est vue ici comme la réponse impulsionnelle d'un système dynamique et sera utilisée au chapitre 2 pour définir le noyau d'une équation de Volterra à comportement de type puissance. Dans la relation (1.12) les constantes ω_{min} et ω_{max} contrôlent le domaine fréquentiel dans lequel le comportement est de type puissance d'ordre ν et C_1 est une constante réelle. La fonction $\Gamma(\cdot)$ désigne la fonction Gamma d'Euler.

L'autocorrélation est calculée avec la formule (1.3). La figure 1.2 représente le logarithme en base 10 de l'autocorrélation de η pour $\nu = 0.2$. Celui-ci met en évidence le comportement de type puissance de η pour $t \in [\omega_{min}, \omega_{max}]$, la courbe tangentant une droite de pente $2\nu - 1 = 0.6$ dans ce cas, correspondant à la définition de mémoire longue 6.

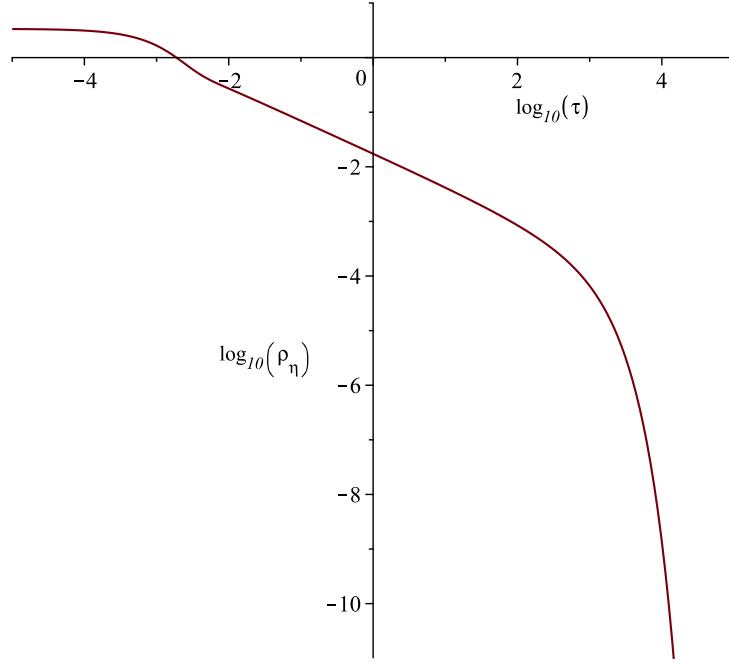


FIGURE 1.2: Tracé $\log_{10} - \log_{10}$ de l'autocorrélation de $\eta_{0.2}$, avec $\omega_{min} = 10^{-6}$, $\omega_{max} = 10^4$

Au travers de ces définitions et cet exemple on constate que si un système dynamique est à mémoire longue, cette mémoire s'évacue dans le temps selon une loi de type puissance ou fractionnaire. Pour simplifier l'appellation, les comportements dynamiques à mémoire longue de type puissance sont désignés à la suite par comportements de type puissance.

1.3 Discussions sur l'origine des comportements de type puissance

1.3.1 Récursivité et comportements de type puissance

La notion de récursivité telle que décrite dans [85] désigne la propriété que doivent respecter les constantes de temps d'un système pour produire un comportement de type puissance particulier, celui d'une fonction de la fonction de transfert $1/s^\nu$, bornée en fréquence ou pas. Précisément, il s'agit d'imposer une distribution géométrique sur les pôles et les zéros de cette fonction de transfert comme indiqué dans l'algorithme suivant.

Algorithme 1. Dans la gamme de fréquence $[\omega_l, \omega_h]$, la fonction de transfert d'un intégrateur non entier de fonction de transfert $I_{Lb}^\nu(s)$ peut être approximée par la fonction de transfert $I_N^\nu(s)$ avec

$$I_{Lb}^\nu(s) = C_0 \left(\frac{1 + \frac{s}{\omega_h}}{1 + \frac{s}{\omega_l}} \right)^\nu \simeq I_N^\nu(s) = C_0' \frac{\prod_{k=1}^N 1 + \frac{s}{\omega_k'}}{\prod_{k=1}^N 1 + \frac{s}{\omega_k}}. \quad (1.13)$$

Comme démontré dans (Oustaloup et al., 2000), les pulsations de coupure ω_k et ω_k' (respectivement les pôles et zéros de la fonction de transfert $I_N^\nu(s)$) doivent être distribuées géométriquement pour obtenir le comportement fréquentiel souhaité, à savoir :

$$r = (\omega_h/\omega_l)^{(1/N)} \quad \alpha = r^\nu \quad \eta = r^{1-\nu} \quad \omega_1 = \eta^{1/2} \omega_l \quad \omega_1' = \alpha \omega_1 \quad \omega_{k+1}' = r \omega_k' \quad \omega_{k+1} = r \omega_k \quad (1.14)$$

Si cette notion de récursivité a prouvé son efficacité à des fins de synthèse, il existe une infinité de distributions possibles pour engendrer un comportement de type puissance. Aussi, en terme d'analyse, il convient d'éviter toute conclusion hâtive et d'associer nécessairement comportement de type puissance et récursivité du phénomène physique qui l'engendre. Le phénomène de marche aléatoire défini dans les paragraphes suivants est un exemple de phénomène physique d'origine non pas récursive mais aléatoire qui induit un comportement de type puissance.

Pour illustrer les propos précédents, analysons la marche aléatoire isotrope d'une particule en dimension 1. On suppose que cette particule se trouve à l'instant initial $t_0 = 0$ à la position $x(0) = 0$. À chaque pas de temps $\Delta t = 1$, cette particule peut se déplacer à gauche ou à droite d'une distance $|b(t)| = 1$ avec une probabilité $p = 1/2$. À chaque instant t , $b(t)$ est donc une variable aléatoire valant soit 1, soit -1 . Plusieurs évolutions possibles au cours du temps de la position d'une particule réalisant cette marche aléatoire sont représentée par la figure 1.3.

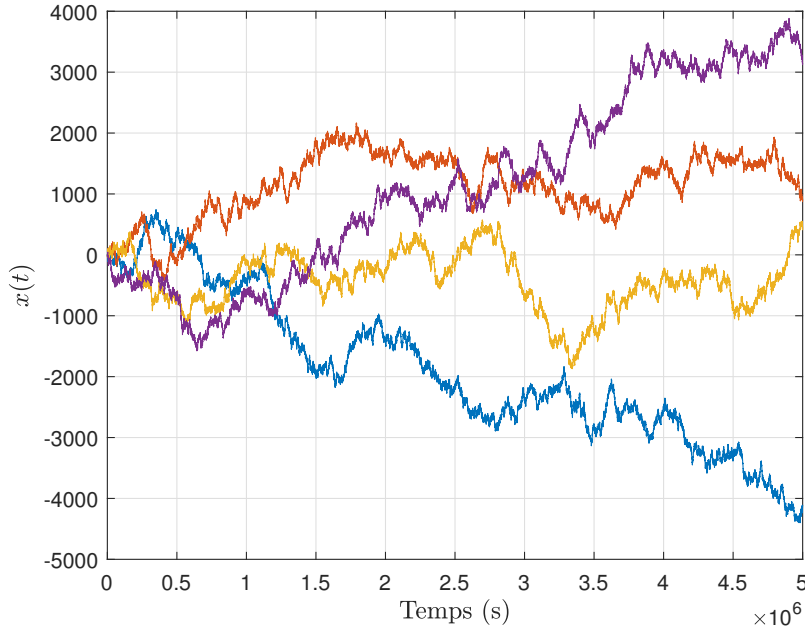


FIGURE 1.3: Position d'une particule effectuant une marche aléatoire pour 5×10^6 sauts

La position de la particule à l'instant $t + 1$ est donnée par la relation suivante

$$x(t + 1) = x(t) + b(t), \quad b(t) = \begin{cases} 1, & \text{avec } p = 1/2 \\ -1, & \text{avec } p = 1/2, \end{cases} \quad (1.15)$$

où $b(t)$ est un processus stochastique (dans le cas continu, on peut considérer que la particule saute au bout d'un temps aléatoire, avec un pas aléatoire et alors $b(t)$ sera défini comme un bruit blanc) de moyenne nulle, soit $\mathbb{E}[b(t)] = 0$.

La position de la particule à un instant t (c'est-à-dire après t sauts) est :

$$x(t) = x(t - 1) + b(t) \quad (1.16)$$

$$= x(t - 2) + b(t - 1) + b(t) \quad (1.17)$$

$$= \dots \quad (1.18)$$

$$= x(0) + \sum_{n=0}^t b(n) \quad (1.19)$$

$$= \sum_{n=0}^t b(n). \quad (1.20)$$

On ne peut pas déterminer la position de façon certaine, mais on peut calculer la valeur moyenne de sa position :

$$\mathbb{E}[x(t)] = \mathbb{E}\left[\sum_{n=0}^t b(n)\right] = 0. \quad (1.21)$$

La distance à l'origine de la particule est quant à elle décrite par $|x(t)| = \sqrt{x(t)^2}$. Comme précédemment, on ne peut pas décrire de façon certaine la distance, mais on peut en évaluer la moyenne. Il est montré dans [74] que cette distance moyenne est de la forme :

$$\mathbb{E}[|x(t)|] \sim \sqrt{\frac{2t}{\pi}}. \quad (1.22)$$

On peut visualiser cela sur un grand nombre de trajectoires de particules. Considérons un nombre N_p de particules, la distance moyenne de l'ensemble des particules est :

$$D(t) = \frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} |x_i(t)|, \quad (1.23)$$

avec $|x_i(t)|$ la distance de la particule i à l'instant t et $x_i(t)$ la position de la particule i à l'instant t .

Si N_p est suffisamment grand, $D(t)$ croît comme $\sqrt{t}$, comme cela est illustré sur la figure 1.4 avec $N_p = 500$. On a donc

$$D(t) \sim t^{1/2}. \quad (1.24)$$

En 1756, de Moivre montre que ce comportement en $\sqrt{t}$ reste le même, que les pas soient de taille fixes ou aléatoires, quel que soit le nombre de dimensions et même si les particules peuvent choisir aléatoirement leur direction de manière homogène.

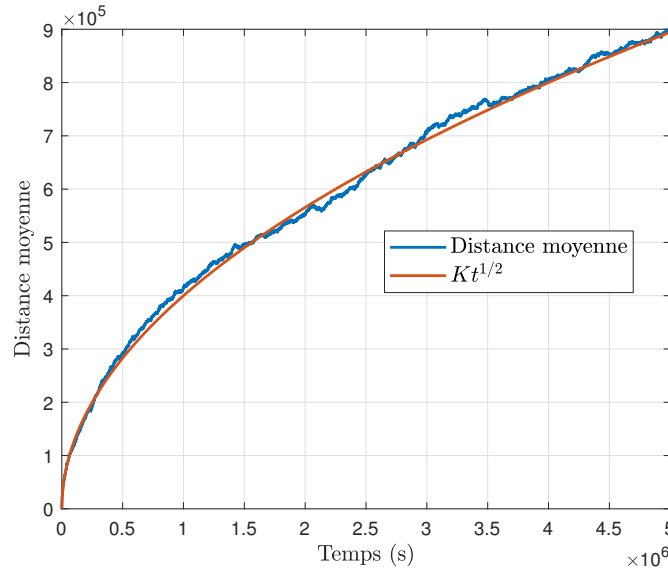


FIGURE 1.4: Moyenne de la valeur absolue de la position de 500 particules durant 5×10^6 sauts

La distance moyenne de ces particules fait donc apparaître un comportement de type puissance qui s'apparente à de la diffusion sans toutefois avoir fait intervenir la notion de récursivité de constantes de temps. Mais il est possible de la faire apparaître artificiellement en adoptant une vision macroscopique. On peut pour cela se placer à une distance donnée et évaluer le nombre de particules qui franchissent cette distance en fonctions du temps. À titre d'exemple la figure

1.5 représente le nombre de franchissement de la distance 1000 en fonction du temps dans le cas de 500 particules en mouvement.

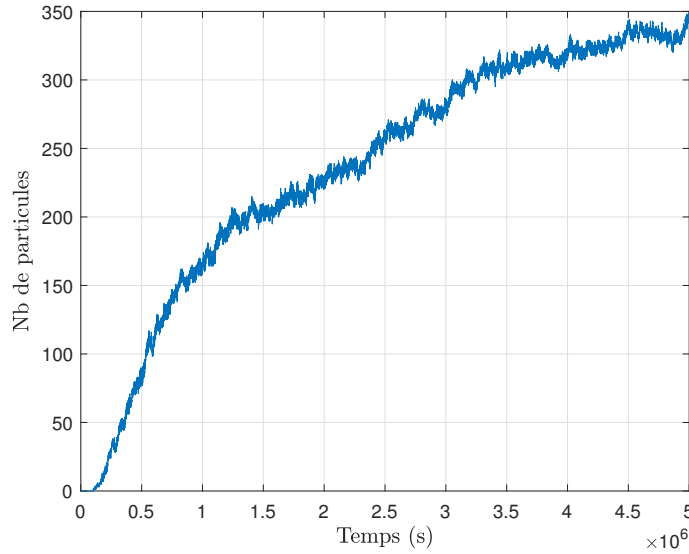


FIGURE 1.5: Nombre de particules ayant franchi la distance 1000 (500 particules en jeu) après 5×10^6 sauts

Dans cet exemple, il faut attendre :

- 10^6 pas de temps pour que 161 particules franchissent la distance 1000,
- 2×10^6 pas de temps pour que $226-161=65$ particules de plus franchissent la distance 1000,
- 3×10^6 pas de temps pour que $280-226=54$ particules de plus franchissent la distance 1000,
- 4×10^6 pas de temps pour que $320-280=40$ particules de plus franchissent la distance 1000,
- 5×10^6 pas de temps pour que $348-320=28$ particules de plus franchissent la distance 1000.

On peut ainsi voir dans ce phénomène la réponse d'un système à retards distribués. C'est d'ailleurs ce qui conduira au chapitre 2 à proposer cette classe de système ou encore les équations de Volterra comme outil de modélisation des systèmes générant des comportements de type puissance.

Mais on peut aussi y voir une distribution de constantes de temps semblable à celle obtenue en discrétisant la réponse impulsionnelle d'une fonction de transfert ayant un comportement de type puissance. À titre d'exemple, considérons la fonction de transfert

$$H(p) = \frac{1}{p(p^\nu + a)} \quad \nu \in]0, 1[\quad a \in \mathbb{R}_+ \quad (1.25)$$

qui admet un comportement de type puissance d'ordre ν sur la gamme de pulsation $[a, \infty[$. Cette fonction de transfert admet la réponse impulsionnelle (voir annexe de [118])

$$h(t) = \frac{1}{a}\Gamma(t) - \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_0^\infty \frac{x^{\nu-1}}{x^{2\nu} + 2a \cos(\nu\pi)x^\nu + a^2} e^{-xt} dx. \quad (1.26)$$

En utilisant un pas de discrétisation Δx la relation (1.26) se discrétise de la façon suivante :

$$h(t) = \frac{1}{a}\Gamma(t) - \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \sum_{k=1}^N \frac{(k\Delta x)^{\nu-1}}{(k\Delta x)^{2\nu} + 2a \cos(\nu\pi)(k\Delta x)^\nu + a^2} e^{-(k\Delta x)t} (k\Delta x), \quad (1.27)$$

qui est une relation de la forme

$$h(t) = \frac{1}{a} \Gamma(t) - \sum_{k=1}^N h_k(k\Delta x) e^{-(k\Delta x)t}. \quad (1.28)$$

Cette relation, qui fait apparaître une distribution des constantes de temps (les $k\Delta x$), produit une réponse temporelle semblable à celle issue de la marche aléatoire de particules puisqu'en effet

- au temps Δx , $h(t)$ recevra principalement la contribution de h_1
- au temps $2\Delta x$, $h(t)$ recevra en plus et principalement la contribution de h_2 ,

Cette récursivité au niveau des constantes de temps permet de capter le comportement de type puissance de la marche aléatoire mais n'est pas en lien avec le phénomène physique sous-jacent qui lui est de nature stochastique. En conclusion, cette analyse indique que l'origine des comportements de type puissance est vraisemblablement plus à rechercher au niveau de phénomènes stochastiques au sens large. C'est ce qui est fait aux chapitres suivants dans le cas de l'adsorption et de l'absorption, ce qui conduira à considérer d'autres outils de modélisation, complémentaires aux modèles non entiers.

1.3.2 Fractalité et comportements de type puissance

L'analyse de la littérature démontre que les notions de fractalité et de comportements de type puissance sont intimement liées [79, 22, 118]. Il a également été démontré que lorsque un phénomène d'ordre entier s'opère sur un domaine fractal, la dynamique globale est fractionnaire [36]. Dans le cas d'une marche aléatoire et en reprenant l'analyse faite au paragraphe précédent, une démonstration très simple se trouve dans [110]. En effet, les particules qui effectuent une marche aléatoire et dont la distance moyenne parcourue se comporte en $t^{1/2}$ sont à présent placées sur une courbe de dimension fractale telle que celle générée par la fonction de Weierstrass. Cette fonction est définie par les relations suivantes :

$$f_{a,b}(x) = \sum_{n=0}^M a^n \cos(b^n \pi x) \quad \text{avec} \quad ab > 1 + \frac{3}{2}\pi. \quad (1.29)$$

Un exemple de ce type de courbe est représenté par la figure 1.6. La fonction de Weierstrass a un caractère fractal avec une dimension de Hausdorff $D = 2 + \ln(a)/\ln(b)$. Imaginons que les particules qui suivent cette courbe en partant de l'origine adoptent une marche aléatoire. Tentons à présent d'évaluer la cinétique de parcours de cet ensemble de particules. D'après la loi de Richardson, la longueur $L(\eta)$ d'une courbe de dimension fractale ν , mesurée avec un pas η est donnée par :

$$L(\eta) = L_0^\nu \eta^{1-\nu}, \quad (1.30)$$

où L_0 désigne la longueur mesurée avec un pas $\eta = L_0$. Si on suppose que η est tel que $L(\eta) = N\eta$, $N \in \mathbb{N}$, alors d'après la relation (1.30),

$$N\eta = L_0^\nu \eta^{1-\nu} \quad \text{soit} \quad L_0 = \eta N^{\frac{1}{\nu}}. \quad (1.31)$$

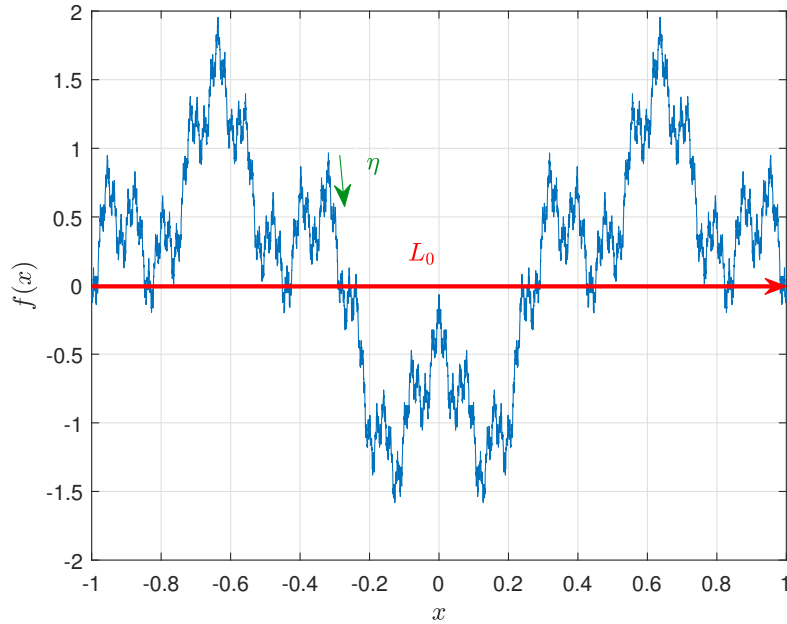


FIGURE 1.6: Un exemple de courbe de Weierstrass avec $a = 0.5$ et $b = 4$ avec $M = 500$

Or, d'après le paragraphe précédent, les particules parcourent en moyenne chaque pas de mesure en $t^{1/2}$. Mais d'après la relation (1.31) l'ensemble des N pas occupe dans l'espace une longueur en $N^{\frac{1}{\nu}}$. La distance L_0 sera donc parcourue en $t^{\frac{1}{2\nu}}$. La distance moyenne parcourue par cette marche ne se comporte plus en $t^{1/2}$ comme donné par l'équation (1.24) pour un déplacement en dimension 1, mais en

$$D_\nu(t) = t^{\frac{1}{2\nu}}, \quad (1.32)$$

où ν est la dimension fractale de la surface portant la marche aléatoire.

La diffusion est donc devenue, sur ce chemin tortueux, une diffusion anormale (*anomalous diffusion*).

Mais dans bien des cas, lorsque l'on s'interroge sur le lien entre fractalité et comportement de type puissance, on est conduit à se poser la question "qui de la poule et de l'œuf fut le premier". C'est le cas d'un phénomène de diffusion classique dans un domaine de dimension 2 par exemple. Un tel phénomène produit un comportement en $t^{1/2}$. Cette diffusion est le résultat du déplacement aléatoire des particules élémentaires dans le domaine considéré. A priori, il n'existe pas de lien apparent entre le comportement de type puissance et la fractalité. Dans une analyse plus fine telle que celle menée par le laboratoire de Physique de la Matière Condensée de Polytechnique en 1985, on s'aperçoit que cette diffusion induit un front dont la dimension est fractale [50].

D'autres exemples seront cités et analysés au prochain paragraphe.

En conclusion, comportements de type puissance et géométries fractales semblent très liées, que ce soit le fait d'un phénomène stochastique qui opère sur un espace fractal ou qu'un phénomène stochastique engendre un espace fractal. Mais au final, on ne fait que rajouter du stochastique au stochastique. Et c'est ce qui conduisit B. Sapoval [110] à écrire : la géométrie fractale serait la géométrie du calcul des probabilités un peu comme la géométrie des courbes dans le plan correspond à l'étude des équations algébriques $F(x, y) = 0$.

Dans le cadre de ce travail de thèse, ce lien entre fractalité et comportements de type puissance observés naturellement, sera exploré au chapitre 3 dans la partie consacrée à l'adsorption sur surfaces fractales.

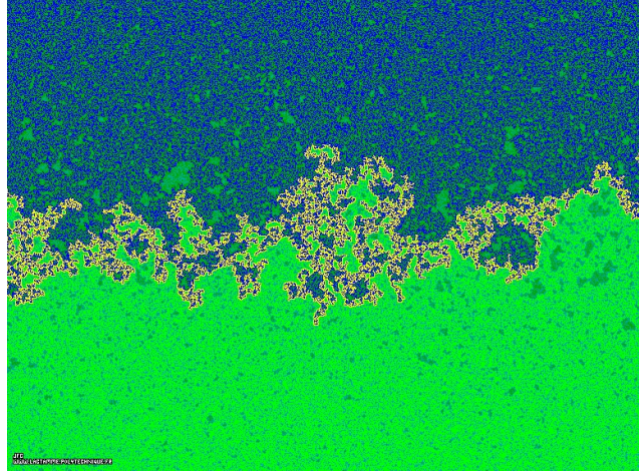


FIGURE 1.7: *Front fractal de diffusion dans un milieu bidimensionnel résultant d'un processus de marche aléatoire [50]*

1.3.3 Auto-similarité et comportements de type puissance

De façon intuitive, un objet autosimilaire est un objet qui conserve sa forme, quelle que soit l'échelle à laquelle on l'observe. C'est notamment le cas de la courbe de la fonction temporelle $f(t) = Kt^\nu$ comme l'illustre la figure 1.8 qui de par sa définition présente également un comportement de type puissance.

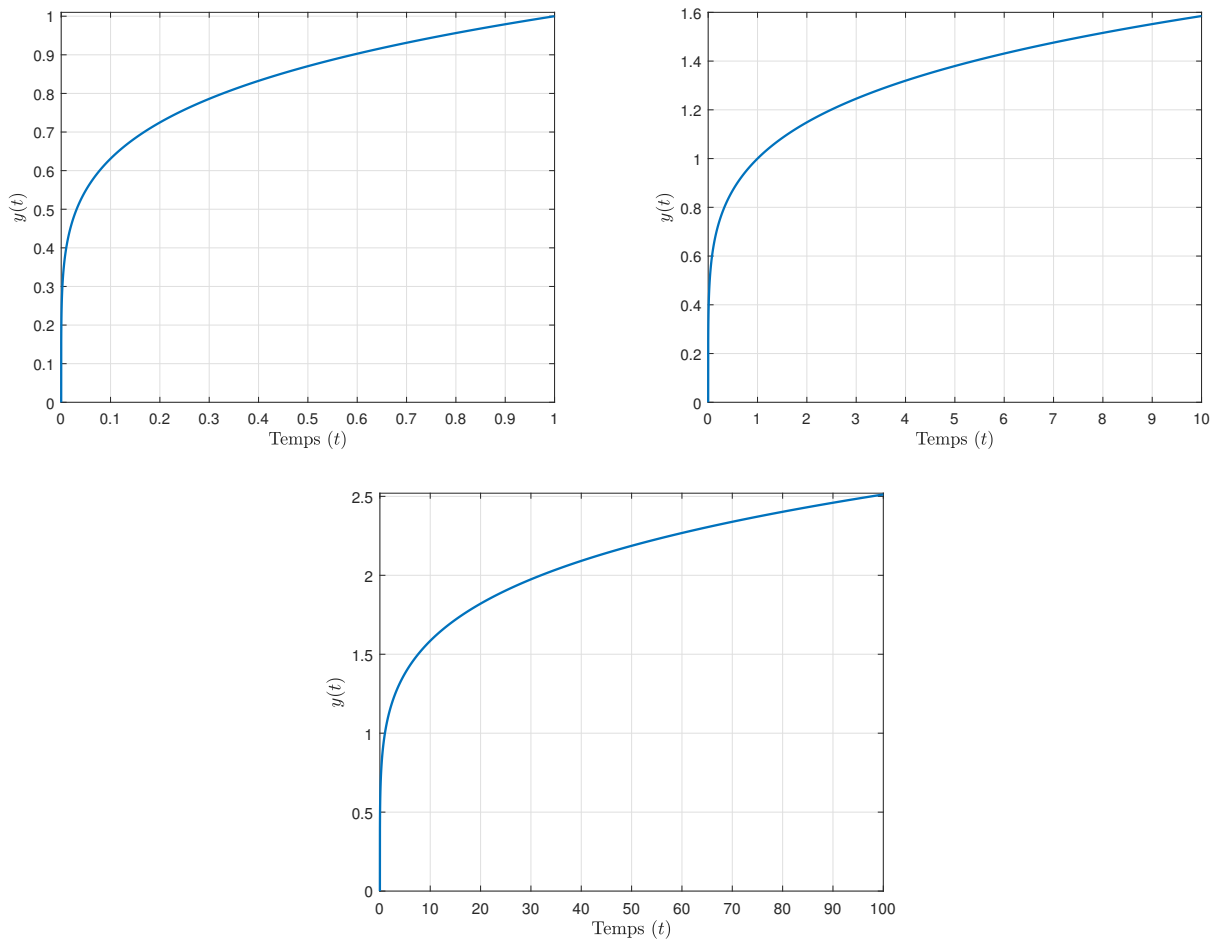


FIGURE 1.8: *Auto-similarité de la fonction $f(t) = Kt^\nu$*

C'est également le cas par exemple de processus en $1/f$, du mouvement brownien fractionnaire, du bruit gaussien fractionnaire.

Fort de cette constatation il est légitime de se poser la question de la nature du lien entre auto-similarité et comportements de type puissance. L'auto-similarité est elle simplement une caractéristique des comportements de type puissance ou en est elle une cause ?

Comme indiqué dans [127], il existe dans la nature des systèmes pour lesquels des événements surviennent à de multiples échelles de temps avec des contributions d'égales importances. Ces systèmes peuvent être traités mathématiquement en supposant une composition de sous-systèmes avec des variables de couplage spéciales. Chacun des sous-systèmes est à son tour fait de sous-sous-systèmes avec une autre variable de couplage et ainsi de suite. C'est donc dans ce cas l'existence d'une multitude d'échelles qui peut produire des comportements auto-similaires et de type puissance si leur contribution est correctement distribuée.

C'est d'ailleurs ce qui est observé au niveau de certains circuits électriques tels que les fractances. Le terme fractance a été introduit par A. Le Mehauté [65] pour désigner des circuits ayant des propriétés liant les éléments qui le composent. Fractance est l'abréviation de "fractional-order impedance". Un exemple de ce type de circuit est représenté par la figure 1.9. Cette figure met clairement en évidence l'auto-similarité d'un tel circuit et sa nature hiérarchique permettant son découpage en sous systèmes. Et sous certaines conditions imposées aux résistances R et C , l'impédance d'entrée de ce type de circuit a un comportement de type puissance comme indiqué dans [130].

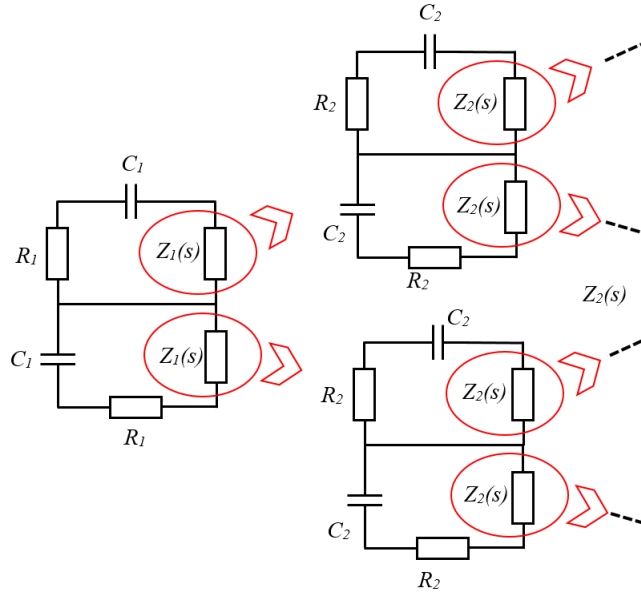


FIGURE 1.9: Circuit électrique auto-similaire

Ces conditions sur les résistances R et C peuvent être très diverses. La plus connue est la distribution géométrique des valeurs de ces éléments qui à son tour va induire des constantes de temps entre les différents sous systèmes elles-mêmes distribuées géométriquement et donc des comportements de type puissance comme discuté au paragraphe 1.3.1 « récursivité et comportements de type puissance ». Mais il existe une infinité de distributions en capacité de générer des comportements de type puissance. Dans [96], il est par exemple démontré que le circuit auto-similaire de la figure 1.10, également connu sous le nom de réseau RC de Cauer, admet un comportement de type puissance si

$$\frac{R_{k+1}}{R_k} = \left(\frac{k+1}{k} \right)^{\lambda_R} \quad \text{et} \quad \frac{C_{k+1}}{C_k} = \left(\frac{k+1}{k} \right)^{\lambda_C}, \quad (1.33)$$

avec $\lambda_R > 0$ et $\lambda_C < 0$.

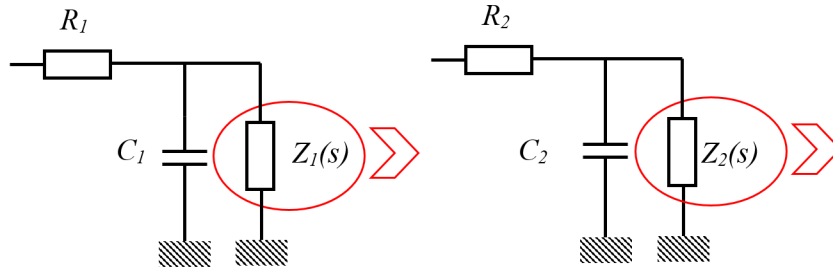


FIGURE 1.10: Circuit électrique auto-similaire de type Cauver

Mais l'absence d'échelle interne est aussi l'une des principales caractéristiques des fractales. On peut en effet dire que dans les fractales un grand nombre d'échelles coexistent de manière auto-similaire. C'est en ce sens, compte tenu du lien entre fractalité et comportements de type puissance détaillé précédemment que des systèmes auto-similaires (dans ce cas fractals) peuvent produire des comportements de type puissance.

Les objets autosimilaires ne sont toutefois pas à confondre avec les fractales : la droite, le plan, l'espace sont autosimilaires sans pour autant être fractals. A l'inverse, les fractales ne sont pas intrinsèquement auto-similaires. C'est le cas des fractales aléatoires qui font apparaître différentes échelles spatiales sans pour autant être auto-similaires. C'est par exemple le cas du terrain fractal de la figure 1.11 obtenu à partir du simulateur en ligne [38].

C'est donc plus l'existence d'échelles spatiales multiples qui induit des comportements de type puissance et que la propriété d'auto-similarité qui oriente vers des cas particuliers.

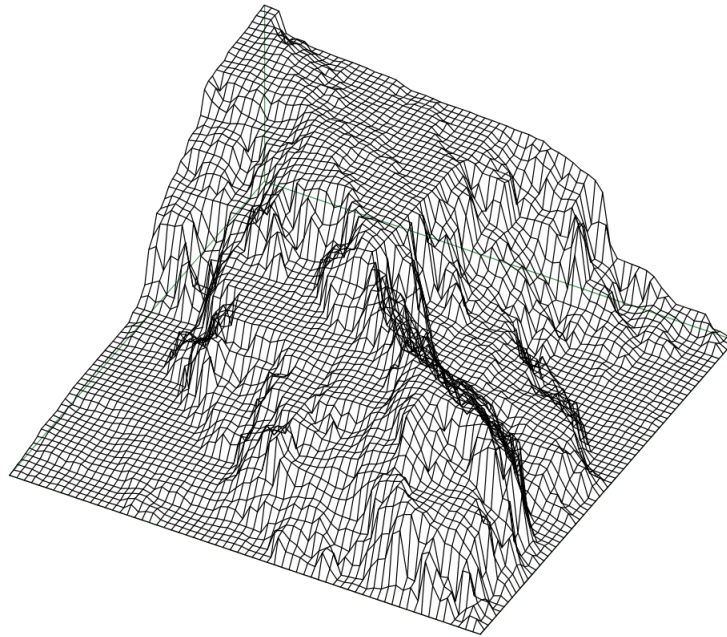


FIGURE 1.11: Un exemple de terrain fractal

1.3.4 Criticalité auto-organisée et comportements de type puissance

Cette partie s'inspire très largement de la description faite dans [86]

La criticalité auto-organisée (de l'anglais self organised criticality) est une théorie de la complexité qui étudie les changements brutaux du comportement d'un système. Cette théorie enseigne que certains systèmes, composés d'un nombre important d'éléments en interaction

dynamique, évoluent vers un état critique, sans intervention extérieure et sans paramètre de contrôle. L'amplification d'une petite fluctuation interne peut mener à un état critique et provoquer une réaction en chaîne menant à un changement de comportement du système [32]. Cette théorie est basée sur deux concepts clefs : l'auto-organisation et la criticalité.

Le terme d'auto-organisation désigne la capacité des éléments d'un système à produire et maintenir une structure à l'échelle du système sans que cette structure apparaisse au niveau des composantes [37] et sans qu'elle résulte de l'intervention d'un agent extérieur. L'auto-organisation n'est pas le fruit d'une intention prédéterminée. Des agents ou des entités en interaction, sans but commun préalablement défini, vont créer, sans le savoir et par imitation, une forme particulière d'organisation. Ce qui caractérise donc les systèmes auto-organisés c'est l'émergence et le maintien d'un ordre global sans qu'il y ait un chef d'orchestre.

La criticalité quant à elle caractérise les systèmes qui changent de phase, par exemple le passage de l'eau à la glace, de la panique individuelle à la panique collective. En fait, le système devient critique quand tous les éléments s'influencent mutuellement. Lorsque cet état critique est atteint, le système peut bifurquer, c'est-à-dire qu'il change brutalement de comportement pour passer d'un attracteur à un autre. Cet état critique est un attracteur du système dynamique atteint à partir de conditions initiales différentes.

Dans l'expression criticalité auto-organisée, l'état critique est dit auto-organisé car l'état du système résulte des interactions dynamiques entre ses composantes et non d'une perturbation externe. L'auto-organisation est donc un processus qui passe par des états critiques.

La notion de criticalité auto-organisée a été proposée pour la première fois en 1987 [8] et cette théorie a été appliquée à de nombreux phénomènes complexes, notamment à l'évolution phylogénique des espèces vivantes, aux mécanismes déclenchant des tremblements de terre, des avalanches, des embouteillages et, pour prendre un dernier exemple, aux krachs boursiers.

Pour illustrer cette théorie, l'expérience du tas de sable a également été utilisée. Elle consiste à ajouter régulièrement des grains à un tas de sable. Petit à petit le sable forme un tas dont la pente, en augmentant lentement, amène le tas de sable vers un état critique. L'ajout d'un grain peut alors provoquer une avalanche de toute taille, ce qui signifie qu'une petite perturbation interne n'implique pas forcément de petits effets. L'état critique auto-organisé d'un système est donc un état où le système est globalement métastable tout en étant localement instable. Cette instabilité locale peut générer une instabilité globale (de grosses avalanches entraînant l'effondrement du tas) qui ramène ensuite le système vers un nouvel état métastable : le tas de sable connaît une nouvelle base.

Comme indiqué dans [7], l'une des particularités des systèmes auto-organisés critiques est de posséder une double signature fractale, temporelle et spatiale. Ainsi, les variables qui décrivent le comportement du système suivent des lois puissance, et les systèmes auto-organisés critiques construisent des formes fractales.

Concernant la construction de formes fractales, on peut la vérifier au moyen d'une version idéalisée de l'expérience du tas de sable connue sous le nom de tas Abélien [39], que l'on peut construire au moyen de l'algorithme suivant. Imaginons une grille carrée infinie. Dans l'une des cases de la grille, on fait tomber un à un des grains de sable. S'il y a plus de quatre grains sur une cette case, la tour de sable bascule. Sa hauteur est réduite de quatre, tandis que les cases situées au nord, à l'ouest, au sud et à l'est de la case renversée reçoivent chacune un grain. On répète à l'infini ce processus de façon à ce qu'aucune case ne contienne pas plus de trois grains. Il suffit alors de colorier les cases en fonction du nombre de grains contenus pour obtenir le motif fractal de la figure 1.12.

Pour ce qui est des lois de puissance des variables décrivant les systèmes critiques auto-organisés, on peut citer le livre [88] et les références citées. Mais ces lois de puissances ne portent pas sur les évolutions temporelles de ces variables. Dans le cadre de l'étude bibliographique menée durant la thèse, il n'a en effet pas été possible de trouver des résultats sur ce thème.

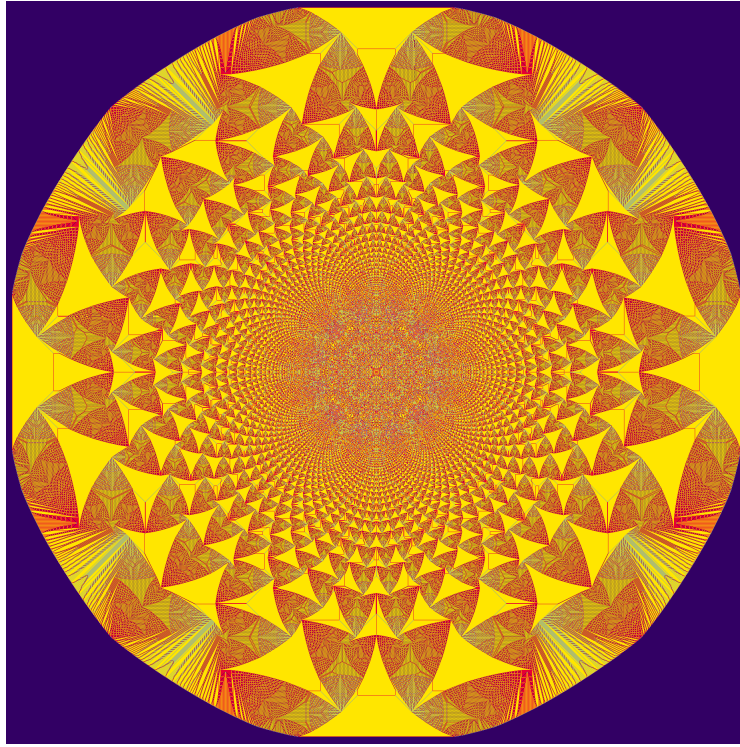


FIGURE 1.12: *Un exemple de tas de sable Abélien*

Pour explorer la possibilité pour les systèmes critiques auto-organisés de produire des comportements de type puissance, nous avons reproduit l'expérience du tas de sable afin de mesurer l'évolution de la hauteur du tas qui se forme à mesure qu'un débit constant de sable coule en son sommet. Cette expérience est illustrée par les photos de la figure 1.13 prises à différents instants de l'expérience.

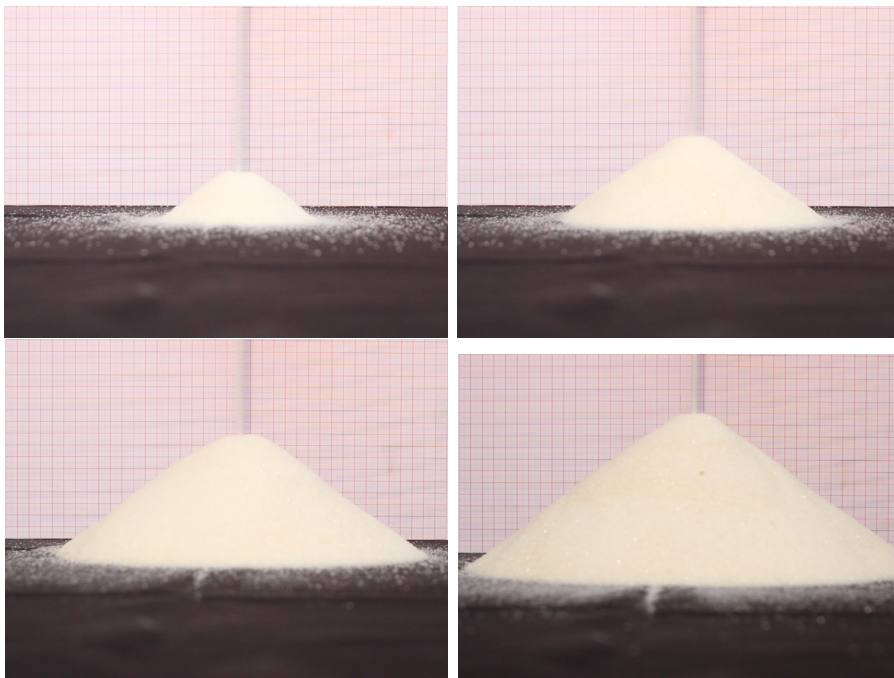


FIGURE 1.13: *Variation de hauteur du tas de sable pour $t = 20s$, $t = 70s$, $t = 180s$, $t = 330s$*

L'évolution temporelle de la hauteur $h(t)$ du tas de sable est représentée par la figure 1.14.

Ces mesures sont fittées sur cette même figure par une fonction de la forme :

$$Kt^\nu \quad \text{avec} \quad K = 10.31 \quad \text{et} \quad \nu = 0.42. \quad (1.34)$$

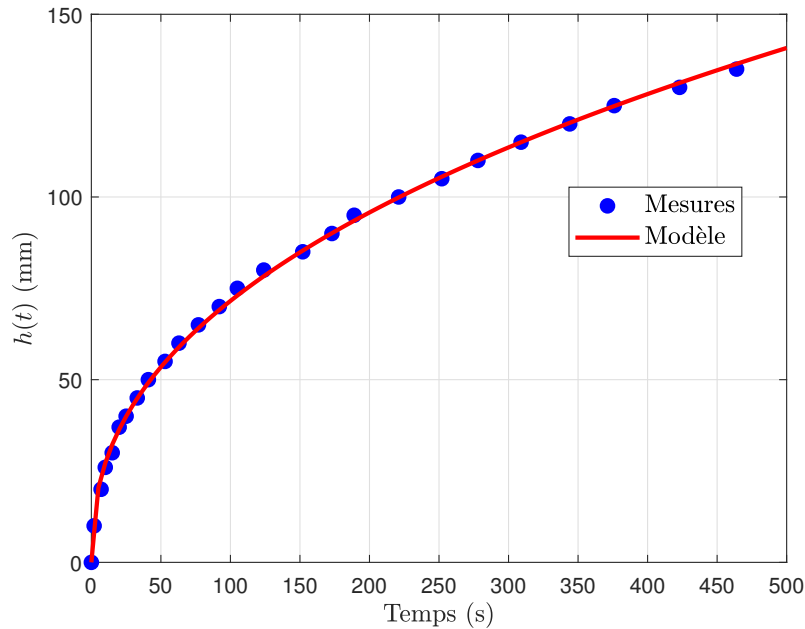


FIGURE 1.14: Evolution temporelle du sommet du tas de sable et fittage avec la fonction Kt^ν

Sur la figure 1.15, le logarithme des mesures de $h(t)$ est tracé en fonction du logarithme du temps t . La courbe obtenue est comparée à une droite de régression de pente 0.42.

Les figures 1.14 et 1.15 mettent donc bien en évidence que la variable $h(t)$ associée au système critique auto-organisé du tas de sable a un comportement de type puissance. Cette analyse indique donc que le lien entre criticalité auto-organisée et comportements de type puissance mériterait d'être exploré plus en détail. Comme cela sera démontré au chapitre 3, l'évolution de la variable $h(t)$ peut être modélisée par un modèle non linéaire, ce qui justifiera l'utilisation de cette classe de modèle pour générer des comportements de type puissance.

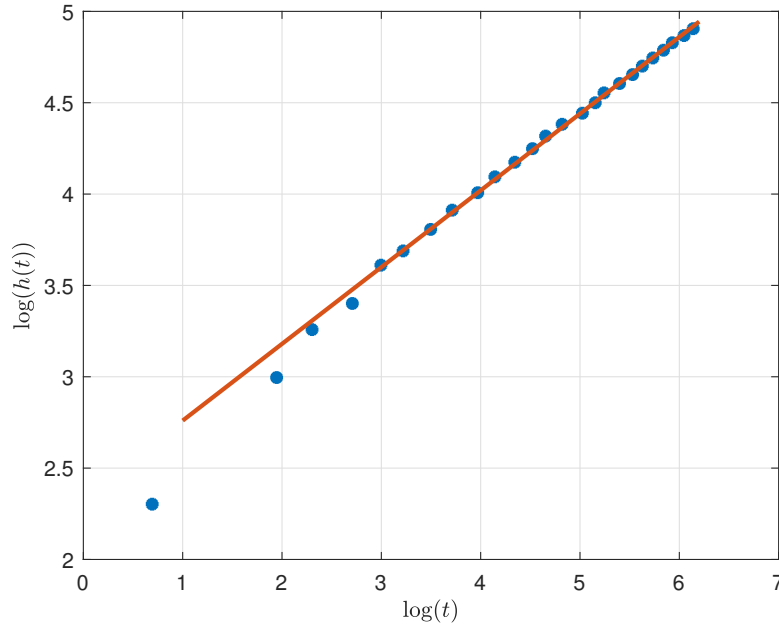


FIGURE 1.15: Tracé de $\log(h(t))$ en fonction de $\log(t)$ et droite de régression

1.4 Exemples de phénomènes stochastiques produisant des comportements de type puissance

Dans cette partie nous présentons différents exemples de phénomènes physiques se produisant à une échelle microscopique et qui génèrent, à une échelle macroscopique, un comportement de type puissance

1.4.1 Diffusion

Diffusion et marches aléatoires

Comme évoqué précédemment, la marche aléatoire de particules, c'est à dire des particules effectuant un mouvement brownien, peut conduire à des cinétiques fractionnaires des déplacements moyens des ces particules. Mais cette marche aléatoire est aussi la représentation mathématique à la base d'un phénomène physique très analysé : le phénomène de diffusion, lui même à l'origine de très nombreux comportements de type puissance. C'est même l'analyse de ces marches aléatoires qui permet d'obtenir les équations utilisés pour modéliser les phénomènes de diffusion et qui montre avec une approche un peu différente de celle adoptée au paragraphe précédent, le caractère de type puissance de ce phénomène.

En effet considérons à nouveau une particule partant à l'instant $k = 0$ de la position $m = 0$ sous une dimension 1. On suppose qu'elle fait un pas à chaque instant (temps et espace discrets). La probabilité d'aller à droite est de p et à gauche de $q = 1 - p$. Le choix du mouvement à droite ou à gauche constitue une épreuve Bernouilli. Au bout de N pas, le nombre de succès S_N suit une loi binomiale $\mathcal{B}(N, p)$. On a donc la probabilité de m succès

$$\mathbb{P}(S_N = m) = \binom{N}{m} p^m (1 - p)^{N-m}. \quad (1.35)$$

La position de la particule au bout de N pas est alors défini par $X_N = S_N - (N - S_N) = 2S_N - N$.

Ainsi, la probabilité que la particule soit à la position m au bout de N pas est donnée par :

$$\mathbb{P}(X_N = m) = \mathbb{P}\left(S_N = \frac{N+m}{2}\right) = P(m, N) = \binom{N}{\frac{N+m}{2}} p^{\frac{N+m}{2}} q^{\frac{N-m}{2}}. \quad (1.36)$$

Un passage à la limite lorsque $N \rightarrow \infty$ conduit à (théorème de Moivre-Laplace) :

$$\lim_{N \rightarrow \infty} P(m, N) = \frac{2}{\sqrt{2\pi\sigma_m^2}} e^{-\frac{1}{2} \frac{\delta_m^2}{\sigma_m^2}}, \quad \sigma_m^2 = 4Npq, \quad \delta_m = m - (p-q)N. \quad (1.37)$$

Le passage en temps et espace continu conduit au mouvement brownien. Ce passage est obtenu en posant $x = m\Delta x$ et $t = N\Delta t$. La probabilité que la particule soit à une distance x à l'instant t est alors :

$$P(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}} e^{-\frac{(x-vt)^2}{4Dt}}, \quad v = (p-q)\frac{\Delta x}{\Delta t}, \quad D = 2pq\frac{(\Delta x)^2}{\Delta t}. \quad (1.38)$$

La probabilité précédente est solution de l'équation de diffusion (appelée équation de Fokker-Planck) :

$$\frac{\partial P(x, t)}{\partial t} = -v \frac{\partial P(x, t)}{\partial x} + D \frac{\partial^2 P(x, t)}{\partial x^2}, \quad x \in \mathbb{R}, \quad t \in \mathbb{R}_+. \quad (1.39)$$

Lorsque $p = q = \frac{1}{2}$ (on parle alors d'isotropie spatiale), le terme v devient nul et l'équation (1.39) devient identique à celle de la chaleur (équation de Fourier) décrivant le phénomène de conduction thermique (la température remplaçant la probabilité P) dans un milieu semi-infini. Un comportement de type puissance est alors retrouvé en prenant la transformée de Laplace de l'équation puis en résolvant l'équation en imposant comme conditions aux limites $P(\infty, t) = P(-\infty, t) = 0$ et $P(x, 0) = \delta(x)$.

D'autres études existent sur le lien entre comportements de type puissance et marche aléatoire. Par exemple, pour un processus de marche aléatoire en temps continu avec des temps d'attente dont la densité de probabilité respecte une loi de puissance, avec des longueurs de saut de variance finie, la densité de probabilité de trouver une particule à la position x au temps t est la solution de l'équation de diffusion non entière en temps, la définition de Riemann-Liouville étant dans ce cas utilisée comme opérateur de dérivée non entière [76, 11]. Des approches similaires considérant d'autres processus continus de marche aléatoire avec différentes fonctions de temps d'attente et de densité de probabilité de longueur de saut existent dans la littérature. Certaines font même apparaître des dérivées non entière spatiales [75]. Mais, il faut observer que ces résultats ont été obtenus avec des analyses temporelles (le temps tend vers l'infini) mais surtout en considérant des espaces de dimension infinie, comme cela sera étudié au chapitre 2.

Diffusion réaction

L'équation de réaction-diffusion la plus simple, portant sur la concentration u d'une seule substance dans une seule dimension de l'espace, est décrite par la relation

$$\frac{\partial u(x, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial x^2} + R(u(x, t)) \quad , \quad x \in \mathbb{R}, \quad t \in \mathbb{R}_+. \quad (1.40)$$

Cette relation dans laquelle la fonction $R(\cdot)$ est très souvent linéaire, est connue sous le nom d'équation KPP pour Kolmogorov-Petrovsky-Piskounov. Il est démontré dans [43, 62] que les phénomènes de diffusion-réaction produisent des motifs géométriques fractals comme l'illustre la figure 1.16.

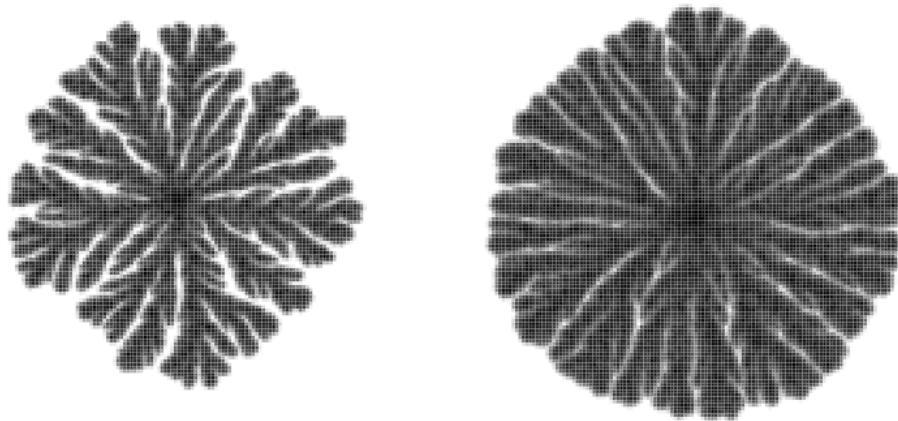


FIGURE 1.16: Motifs observés dans les colonies de *Bacillus subtilis* OG-01 en fonction de la concentration en nutriments et dont la croissance est régie par une équation de diffusion réaction [62]

Quand ils sont accompagnés de réactions, les phénomènes de diffusion conduisent dans certaines conditions à produire des comportements de type puissance. C'est ce qui est mis en évidence dans [58] où un modèle de réaction-diffusion est utilisé pour interpréter la dissociation et la reformation des liaisons Si/H présentes au niveau du silicium - interfaces d'oxyde d'un transistor CMOS. C'est aussi le cas dans [12] au sujet d'une réaction $A + B \rightarrow \emptyset$ contrôlée par diffusion, qui indique l'existence de loi de puissance, à la fois dans les densités des espèces en réaction et dans le front de réaction.

Domaines d'occurrence

Le concept de diffusion est très largement utilisé dans de nombreux domaines tels que la physique, la chimie, la biologie, la sociologie, l'économie, la finance et il serait impossible d'en faire une liste exhaustive. Les entités sur lesquelles portent ces diffusions peuvent elles aussi être de natures très variées : des molécules, des cellules, des gens, des idées ou encore des prix. Pour avoir un aperçu de l'étendu des domaines d'occurrence des phénomènes de diffusion, il sera possible de se reporter aux ouvrages [49, 25].

1.4.2 Adsorption

En chimie, l'adsorption est un phénomène de surface dans lequel des atomes, des ions ou des molécules (adsorbats) se fixent à une surface solide (adsorbant) à partir d'une solution gazeuse, liquide ou solide. Ce processus est basé sur l'interaction de l'adsorbat avec une surface, et peut impliquer différents processus, plus ou moins intenses, tels que les interactions de Van der Waals [21], les interactions dipolaires, des liaisons chimiques covalentes ou ioniques [95].

Adsorption Séquentielle Aléatoire (ASA)

Le phénomène d'adsorption a très largement été étudié dans la littérature au moyen d'une version idéalisée nommée Adsorption Séquentielle Aléatoire ou ASA (de l'anglais Random sequential adsorption ou RSA). L'adsorption séquentielle aléatoire désigne un processus dans lequel des particules sont déposées de manière aléatoire sur une surface, et si elles ne chevauchent aucune particule précédemment adsorbée, elles s'adsorbent et restent fixes pour le reste du processus. L'ASA peut être étudiée dans le cadre d'expériences, d'une analyse mathématique ou

d'une simulation informatique comme l'illustre la figure 1.17 issue d'une simulation d'un dépôt de disques sur un plan.

L'ASA a d'abord été étudiée en dimension 1 dans le cadre de l'attachement de groupes dans une chaîne de polymères [47], et du problème du stationnement des voitures [93]. En deux dimensions et plus, de nombreux systèmes ont été étudiés par simulation informatique. En 2D, ces simulations ont porté sur des disques, des carrés et des rectangles orientés de façon aléatoire [28], des carrés et des rectangles alignés et diverses autres formes. Beaucoup d'études ont également porté sur des dépôts de k-mers sur différents type de treillis afin de reproduire et d'analyser la formation de polymères [117].

Un résultat important de ces études porte sur la couverture maximale de la surface, appelée couverture de saturation ou « *packing fraction* ».

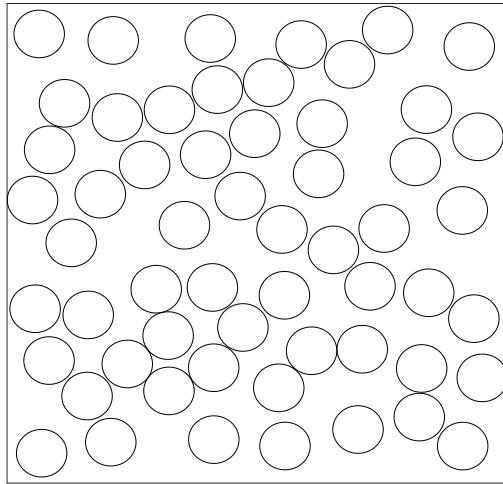


FIGURE 1.17: Exemple d'un remplissage partiel d'une surface par ASA

L'ASA fait apparaître dans certaines situation des motifs fractals comme dans le cas de dépôts d'aiguilles représentés par la figure 1.18 [131] et des cinétique de type puissance [18]. C'est pour cette raison que l'adsorption et son modèle mathématique que constitue l'ASA seront étudiés plus en détail au chapitre 3.

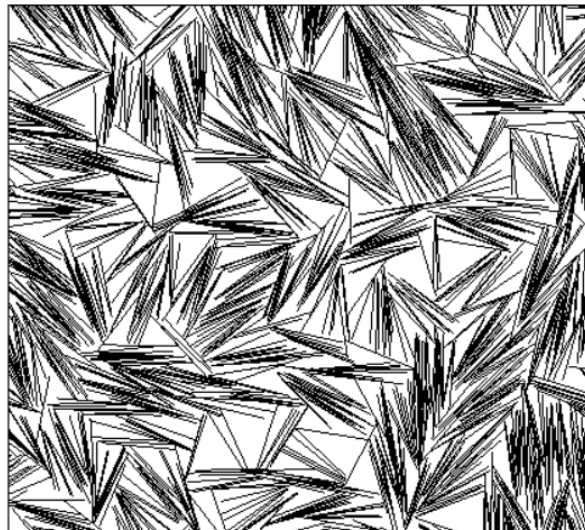


FIGURE 1.18: RSA d'aiguilles faisant apparaître des motifs fractals

Domaines d'occurrence

L'adsorption est largement utilisée dans les applications académiques dans les domaines physiques, chimiques ou biologiques pour capter les polluants, pour la séparation de gaz, comme catalyseurs, et donc en règle générale éliminer une substance à partir de solutions liquides ou gazeuses [17]. Le phénomène d'adsorption est également largement utilisé dans l'industrie en particulier pour la purification de l'eau [17] mais aussi dans de nombreuses autres applications (par exemple, [30, 31]), comme la conception de capteurs [53, 80].

1.4.3 Agrégation et dépôts balistiques

Agrégation

L'agrégation désigne le phénomène selon lequel des particules ou des clusters de particules (au sens large puisqu'il peut s'agir de globules sanguins ou d'objets célestes) s'agglomèrent de façon définitive lorsqu'ils se rencontrent. Ce phénomène est illustré notamment dans [4] (voir figure 1.19) au travers de la formation de plusieurs clusters en fonction du temps.

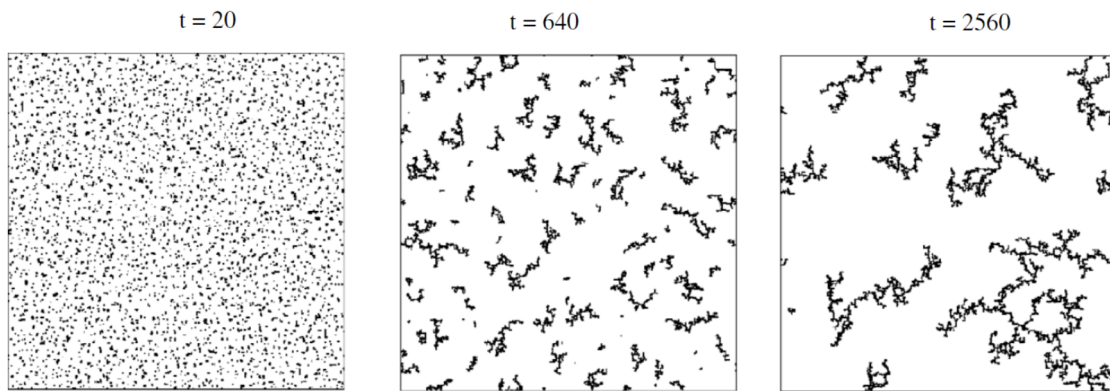


FIGURE 1.19: Formation de clusters [4]

Ce phénomène est également connu dans la littérature sous l'appellation « *diffusion-limited aggregation* ». Il est en effet question de « Diffusion limitée » car les particules sont considérées comme étant à de faibles concentrations, elles n'entrent donc pas en contact les unes avec les autres et la structure se développe une particule à la fois plutôt que par morceaux de particules. Ce phénomène produit des structures dendritiques telles que celles de la figure 1.20. Dans sa version idéalisée, un modèle mathématique du phénomène d'aggrégation est l'arbre brownien. Un arbre brownien est construit en suivant les étapes suivantes. D'abord, une "graine" est placée quelque part sur un plan. Ensuite, une particule est placée dans une position aléatoire du plan, et déplacée de façon aléatoire jusqu'à ce qu'elle heurte la graine. La particule est laissée là, et une autre particule est placée dans une position aléatoire et déplacée jusqu'à ce qu'elle heurte la graine ou une particule précédente, et ainsi de suite. Un cluster tel que celui de la figure 1.21 issu de [46] est alors obtenu. Comme indiqué dans [121], la cinétique de croissance du cluster, c'est à dire la variation de son rayon $R(t)$ est de la forme

$$\frac{dR(t)}{dt} = KR^{d-1-\nu}, \quad (1.41)$$

où K est une constante, d est la dimension de l'espace dans lequel se produit la croissance et ν est la dimension fractale du cluster. La relation (1.41) admet une solution ayant un comportement de type puissance comme démontré au chapitre 3, ce qui d'ailleurs conduira à adopter cette classe de modèles pour modéliser d'autres comportements de type puissance dans ce même chapitre.

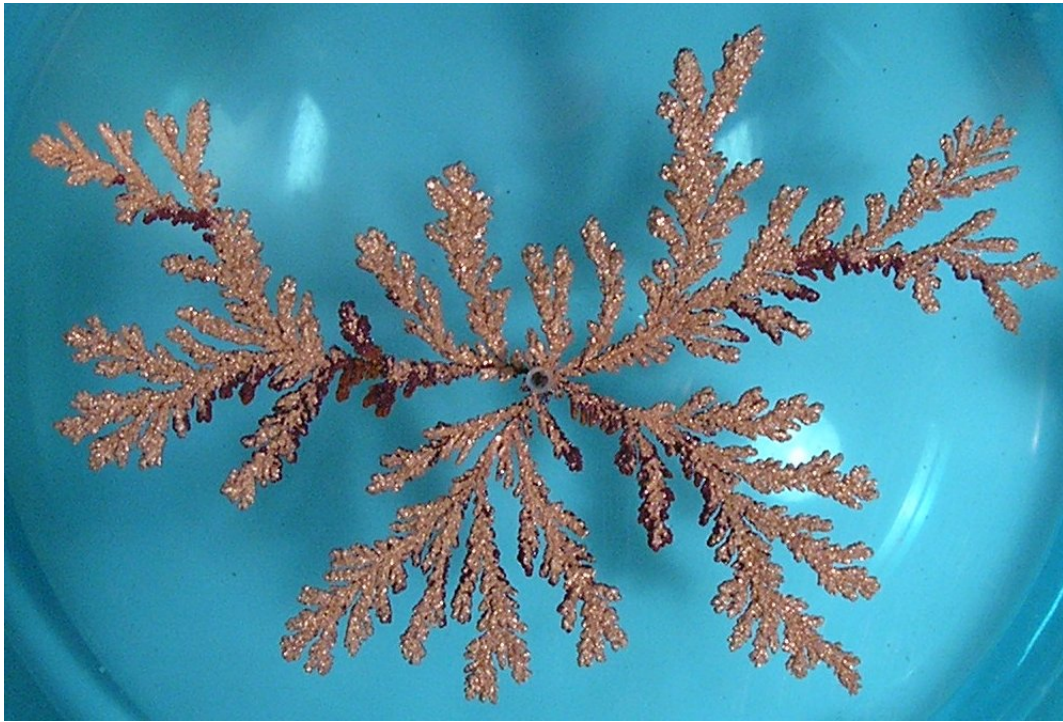


FIGURE 1.20: Structure dendritique produite par agrégation de particules de cuivre d'une solution de sulfate de cuivre dans une cellule d'électrodéposition (image libre, auteur Kevin R. Johnson)

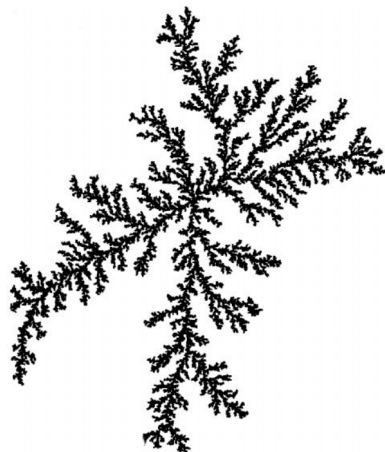


FIGURE 1.21: Un exemple d'arbre brownien [46]

Dépôts balistiques

Le processus par lequel des particules tombent sur une surface et restent collées là où elles atterrissent est connu sous le nom de dépôt balistique. Contrairement à l'agrégation, les particules ne subissent pas de mouvement brownien avant de s'agglomérer, elles frappent une surface collante dans une seule direction et se collent aux particules qui font déjà partie de la masse par une croissance en hauteur ou sur un côté. Ce processus reproduit des phénomènes de sédimentation tel que celui de la figure 1.22 [9] créés à partir de nanoparticules.

Mathématiquement, il peut être modélisé en faisant tomber une à une des particules sur une ligne en suivant des trajectoires verticales aléatoires. On obtient alors des structures, de géométries fractales, telles que celles de la figure 1.23.

Au-delà de la construction d'objets ayant des géométries fractales, certaines caractéristiques de ces dépôts balistiques, par exemple l'évolution temporelle du plus haut sommet du dépôt ou encore la rugosité, admettent des cinétiques de type puissance comme indiqué dans [9, 125, 41].

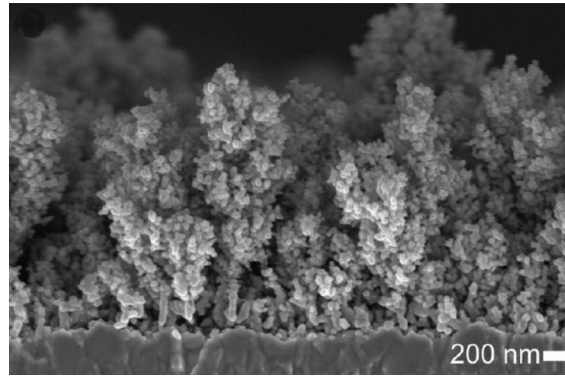


FIGURE 1.22: Diélectrique fait de nanoclusters de TiO_2 [9]

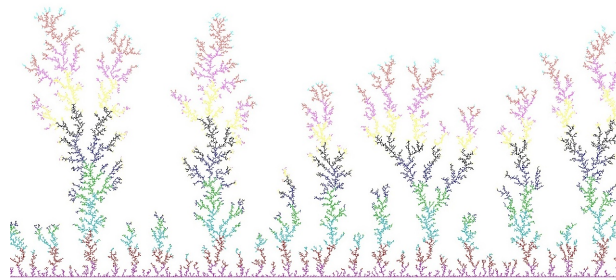


FIGURE 1.23: Croissance par dépôt balistique (image libre, auteur Wingk LEE)

Domaines d'occurrence

Le phénomène d'agrégation (limité par diffusion) se rencontre dans de multiples domaines. On peut par exemple citer la diffusion et l'agrégation d'ions dans une solution électrolytique sur des électrodes [109, 94]. D'autres exemples peuvent être trouvés dans la croissance des coraux, le chemin emprunté par la foudre, la coalescence des particules de poussière ou de fumée et la croissance de certains cristaux [113, 10, 90].

Le processus de dépôt balistique a quant à lui été proposé pour la première fois dans [123] en 1959 pour modéliser des phénomènes de sédimentation. On retrouve ce modèle dans d'autres travaux de modélisation tels que ceux décrits dans [115] au sujet de la croissance de film mince par dépôt de vapeur avec application à la métallisation de via (trou métallisé qui permet d'établir une liaison électrique entre deux couches d'un circuit imprimé). Ce type de modèle a également été utilisé pour développer une nouvelle famille de matériaux diélectriques-plasmoniques par dépôt (voir figure 1.22 [41]) pour des applications allant de photo-catalyseurs aux capteurs sans contact pour les diagnostics médicaux non invasifs.

1.4.4 Fragmentation

Un processus de fragmentation est un événement de fracture itératif qui se produit au niveau moléculaire, où les forces agissant sur un matériau produisent la rupture de liaisons chimiques individuelles permettant l'apparition de fissures ou de chemins de fissures [54] comme l'illustre la figure 1.24.

Fragmentation planaire

L'étude des processus de fragmentation est axée sur la construction d'un modèle mathématique afin de comprendre le mécanisme qui génère la rupture itérative et les propriétés de ce système dynamique. L'obtention d'une expression mathématique exacte d'un modèle de fragmentation a été un défi important en mécanique pendant de nombreuses années en raison de la

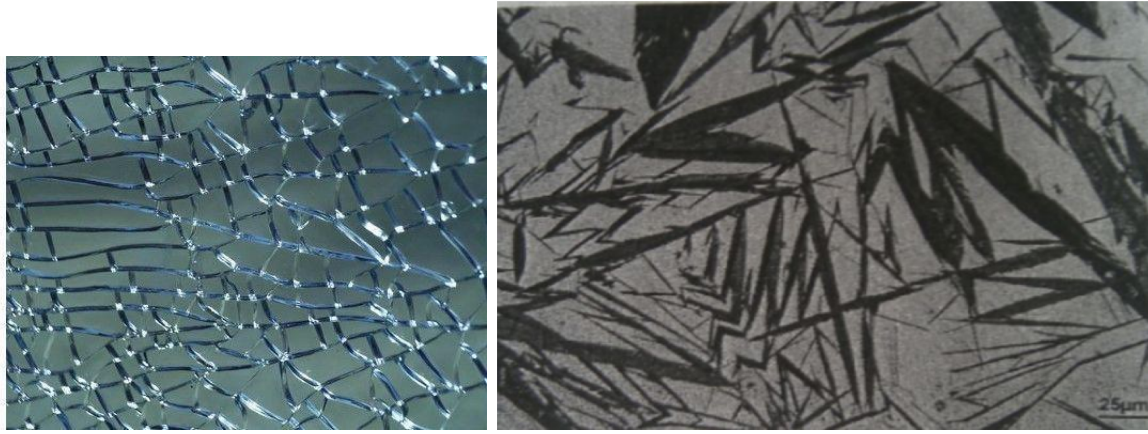


FIGURE 1.24: *Fragmentation d'un verre trempé [119] (gauche) et formation de martensite [40] (droite)*

caractéristique instantanée du processus, du comportement inconnu des particules et du manque d'équations qui représentent la croissance des fissures [51].

En termes de modèles mathématiques du processus de fragmentation on trouve le modèle de fragmentation rectangulaire ou encore le modèle de fragmentation isotrope. Ces modèles représentés par la figure 1.25 sont issus d'une construction itérative aléatoire. Dans le cas de la fragmentation rectangulaire le processus de construction consiste à :

- sélectionner de façon aléatoire un rectangle avec une probabilité proportionnelle à sa surface,
- fragmenter le rectangle en deux rectangles plus petits à partir d'un point aléatoire à l'intérieur du rectangle sélectionné, verticalement ou horizontalement avec une probabilité égales.

L'analyse statistique d'un tel phénomène [61] permet de démontrer que la moyenne de la longueur des fragments $\langle l \rangle$ évolue de la façon suivante,

$$\langle l \rangle \sim t^{(-3-\sqrt{5})/2}, \quad (1.42)$$

et met donc en évidence une cinétique de type puissance.

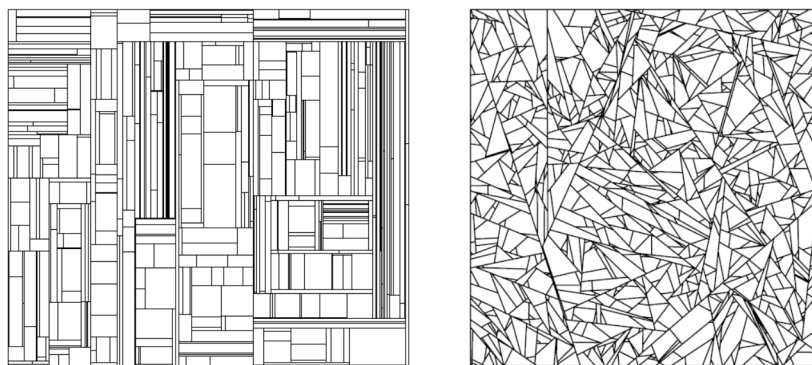


FIGURE 1.25: *Fragmentation rectangulaire (gauche) et isotrope (droite) [61]*

Domaines d'occurrence

Dans la nature comme dans les objets technologiques, les processus de fragmentation sont des phénomènes à plusieurs échelles qui apparaissent dans de nombreux domaines, notamment en astronomie, en géologie, métallurgie [40], dans les mines et dans la fission nucléaire [48, 2].

1.5 Conclusion

Ce premier chapitre fournit du matériel technique qui sera utilisé par la suite, mais il relate surtout, au travers d'une analyse bibliographique, une recherche des origines physiques des comportements de type puissance sur lesquels portent ce mémoire de thèse. Pour cela des théories physiques récentes telles que la récursivité, la fractalité, la criticalité et l'auto-similarité sont analysées. Des phénomènes physiques majeurs tels que la diffusion, l'adsorption, l'agrégation, la fragmentation sont également considérés.

Cette recherche bibliographique met en évidence qu'une origine physique récurrente des comportements de type puissance résulte du comportement stochastiques d'agents au sens large (atomes, ions, bactéries, humains, ...) dans un milieu contraint par la géométrie [120]. Une contrainte géométrique particulièrement analysée dans le cadre de ce travail est la fractalité de cette géométrie. La fractalité dont on parle ici n'est pas celle obtenue par construction récursive mais de façon stochastique.

Ce premier chapitre met en effet en évidence le lien très étroit entre fractalité et comportements de type puissance dans un cadre stochastique. Des comportement stochastiques dans un domaine fractal engendrent des comportements de type puissance et des comportements stochastiques dans un milieu homogène et ordonné engendrent eux aussi des comportements de type puissance mais également des géométries fractales nées du hasard. Cette analyse conforte donc l'idée que les comportements de type puissance sont à rechercher dans les phénomènes stochastiques.

Certains de ces phénomènes de nature stochastique sont analysés dans ce premier chapitre et notamment le phénomène d'adsorption et d'agrégation. Tous les deux font apparaître des cinétiques de type puissance issues de modèles non linéaires. Ils permettent de penser qu'il existe d'autres modèles que les modèles non-entiers qui produisent des comportements de type puissance. Cette idée est reprise au chapitre suivant qui, mettant en évidence certaines limites des modèles non entiers, propose d'autres outils de modélisation.

Chapitre 2

Des outils de modélisation dédiés aux phénomènes à mémoire longue de type puissance

2.1	Introduction	30
2.2	Généralités sur les modèles entiers	30
2.3	Modèles non-entiers et propriétés	31
2.3.1	Intégration non-entière	31
2.3.2	Dérivation non-entière	32
2.3.3	Caractérisation fréquentielle d'un dérivateur et d'un intégrateur d'ordre non-entier réel	33
2.3.4	Fonction de transfert non-entière	34
2.3.5	Pseudo représentation d'état	35
2.3.6	Représentation diffusive	35
2.3.7	Mise en évidence de différentes limitations	36
2.4	Équations de Volterra comme généralisation des modèles non-entiers	39
2.4.1	Différents noyaux pour les comportements à mémoire longue de type puissance	40
2.4.2	Méthode de détermination d'un noyau	44
2.4.3	Application à la modélisation d'une cellule lithium-ion	48
2.5	Modèles à retards distribués	52
2.5.1	Modèles à retards distribués présentant un comportement à mémoire longue de type puissance	53
2.5.2	Application à la modélisation de données réelles	57
2.6	Équations de diffusion à coefficients spatialement variables	58
2.7	Modèles non linéaires	61
2.7.1	Exemple du tas de sable	62
2.7.2	Généralisation du modèle (2.163)	63
2.8	Conclusion	66

2.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons présenter différents outils de modélisation qui permettent de capturer le comportement à mémoire longue de type puissance de différents systèmes et en analyser les avantages et les limitations.

Afin de décrire l'évolution d'un système dynamique, les modèles mathématiques font intervenir des dérivées. Ces dérivées peuvent être d'ordre entier, et on parlera alors de modèles entiers ; ou d'ordre non-entier, et on parlera alors de modèles non-entiers. Après avoir rappelé certaines définitions dans le cas usuel des modèles entiers dans la partie 2.2, la partie 2.3 s'attache à détailler les modèles non-entiers, qui sont l'outil de modélisation généralement utilisé pour les systèmes à comportement de type puissance de par leur capacité à capturer de manière fine et avec peu de paramètres ce type de dynamique. Ces modèles présentent néanmoins un certain nombre d'inconvénients, décrits en fin de partie 2.3. Afin de lever une partie de ces inconvénients, d'autres classes de modèles sont proposées par la suite. Dans la partie 2.4, des modèles basés sur les équations intégrales de Volterra, qui généralisent les modèles non entiers (ces deux types de modèles s'intersectent lorsque le noyau dans l'équation de Volterra est particularisé) sont présentés, puis analysés sur la base de données réelles. De même, la partie 2.5 est consacrée à la présentation des modèles à retards distribués, qui sont des modèles faisant intervenir un délai sur l'état du système. La capacité de ces modèles à produire des comportements à mémoire longue de type puissance est analysée en fin de partie 2.5. Enfin, dans la partie 2.7, une classe de modèles non linéaires dit *affine en l'entrée* est introduite. Elle est analysée dans un premier temps sur un exemple dans la partie 2.7 et sera plus largement utilisée au chapitre 3.

2.2 Généralités sur les modèles entiers

L'outil très répandu pour représenter un système dynamique est la représentation d'état. Dans le cas général des modèles entiers, cette représentation d'état est de la forme

$$\begin{cases} \dot{x}(t) &= f(x, u, t) \\ y(t) &= h(x, u, t) \end{cases}, \quad (2.1)$$

où

- $x \in \mathbb{R}^n$ est le vecteur d'état,
- $y \in \mathbb{R}^m$ le vecteur de sortie,
- $u \in \mathbb{R}^p$ le vecteur d'entrée.

Si f et h sont des fonctions linéaires par rapport à x et u , la représentation d'état des systèmes est dite linéaire. Si en plus le système est stationnaire, on parle de système linéaire invariant dans le temps (LTI) et la représentation d'état 2.1 devient :

$$\begin{cases} \dot{x}(t) &= Ax(t) + Bu(t) \\ y(t) &= Cx(t) + Du(t) \end{cases}, \quad (2.2)$$

où $A \in \mathbb{R}^{n \times n}$, $B \in \mathbb{R}^{n \times m}$, $C \in \mathbb{R}^{p \times n}$ et $D \in \mathbb{R}^{p \times m}$ sont des matrices à coefficients constants.

On peut également représenter un système linéaire au repos (en l'absence de condition initiale) dans le domaine fréquentiel grâce à sa fonction de transfert.

Définition 8 (Fonction de transfert). *Soit un système LTI monovariante, c'est-à-dire possédant une unique entrée $u(t)$ et une unique sortie $y(t)$. La fonction de transfert du système lie la transformée de Laplace $U(s)$ de l'entrée à la transformée de Laplace $Y(s)$ de la sortie par la relation*

$$Y(s) = G(s)U(s) \quad (2.3)$$

où $G(s)$ est exprimée (généralement) par la fraction rationnelle

$$G(s) = \frac{N(s)}{D(s)}, \quad (2.4)$$

avec $N(s)$ et $D(s)$ des polynômes en s , cette dernière désignant la variable de Laplace.

Une autre manière de représenter un système LTI est d'utiliser sa réponse impulsionnelle.

Définition 9 (Réponse impulsionnelle). *La réponse impulsionnelle d'un système dynamique est sa réponse à une distribution de Dirac.*

La connaissance de la réponse impulsionnelle permet de déterminer la sortie du système pour une entrée donnée via le produit de convolution $y(t) = u(t) * h(t)$, où $h(t)$ est la réponse impulsionnelle du système et $u(t)$ est l'entrée considérée.

Une autre réponse temporelle utilisée dans ce manuscrit pour caractériser le comportement d'un système est la réponse indicielle, définie comme suit.

Définition 10 (Réponse indicielle). *La réponse indicielle d'un système dynamique est sa réponse à un échelon, c'est-à-dire à une fonction de Heaviside $\mathcal{H}(t)$ définie par la relation suivante :*

$$\forall t \in \mathbb{R}, \mathcal{H}(t) = \begin{cases} 0 & \text{si } t < 0, \\ 1 & \text{si } t \geq 0. \end{cases} \quad (2.5)$$

2.3 Modèles non-entiers et propriétés

Les modèles non-entiers sont très répandus lorsqu'il s'agit de capter des comportements de type puissance (cf. chapitre 1) car ils permettent de gérer ce type de comportement en faisant appel à un nombre réduit de paramètres. Cette section est donc consacrée à leur description ainsi qu'à la mise en évidence d'un certain nombre d'avantages et de limitations.

Le calcul dit « fractionnaire » dont résulte les modèles non entiers également appelés modèles fractionnaires, repose sur une généralisation des notions de dérivation et d'intégration à des ordres non-entiers. Les définitions les plus populaires de la dérivation non-entière sont celles de Riemann-Liouville, de Grünwald-Letnikov et celle de Caputo. Toutes ces notions sont à présent détaillées.

2.3.1 Intégration non-entière

Soient $t_0 \in \mathbb{R}$ et $f(t)$ une fonction de $\mathbb{R}$ dans $\mathbb{C}$ continue par morceaux sur $]t_0, +\infty[$ et intégrable sur $[t_0, t[$ pour tout $t > t_0$. La formule de *Cauchy* permet d'exprimer l'intégrale entière d'ordre $n \in \mathbb{N}^*$ de $f(t)$ par :

$$\mathbf{I}_{t_0}^n f(t) = \frac{1}{(n-1)!} \int_{t_0}^t (t-\tau)^{n-1} f(\tau) d\tau. \quad (2.6)$$

En s'inspirant de la formule de *Cauchy*, *Riemann* a défini en 1847 l'expression générale de l'intégrale d'ordre $\nu \in \mathbb{R}_+^*$ de $f(t)$ sous la forme de l'expression suivante :

$$\mathbf{I}_{t_0}^\nu f(t) \triangleq \frac{1}{\Gamma(\nu)} \int_{t_0}^t (t-\tau)^{\nu-1} f(\tau) d\tau. \quad (2.7)$$

L'opérateur d'intégration $\mathbf{I}_{t_0}^\nu$, est appelé intégrale de Riemann-Liouville d'ordre ν , ou plus simplement opérateur d'intégration non-entière d'ordre ν . La fonction complexe $\Gamma(\cdot)$ est la fonction Gamma d'Euler (étendant l'opération factorielle aux nombres complexes sans les entiers négatifs) définie par

$$\Gamma(\nu) = \int_0^\infty e^{-x} x^{\nu-1} dx, \quad \forall \nu \in \mathbb{C} \setminus \mathbb{Z}^-. \quad (2.8)$$

Remarque 2. Pour $\nu = n \in \mathbb{N}^*$, l'intégration à un ordre entier (2.6) devient un cas particulier de l'intégration à un ordre non-entier (2.7).

Transformée de Laplace de l'intégrale non-entière d'une fonction temporelle

Si f est nulle sur $] -\infty, 0[$ (elle est alors dite « temporelle »), et on peut écrire l'intégration non-entière comme un produit de convolution :

$$\mathbf{I}_0^\nu f(t) = \frac{t^{\nu-1} u(t)}{\Gamma(\nu)} * f(t). \quad (2.9)$$

Cela permet de calculer la transformée de Laplace de l'intégrale non-entière d'une fonction temporelle :

$$\mathcal{L} \{ \mathbf{I}_0^\nu f(t) \} = \mathcal{L} \left\{ \frac{t^{\nu-1} u(t)}{\Gamma(\nu)} * f(t) \right\} = \mathcal{L} \left\{ \frac{t^{\nu-1} u(t)}{\Gamma(\nu)} \right\} \mathcal{L} \{ f(t) \} = \frac{1}{s^\nu} F(s), \quad (2.10)$$

où $u(t)$ est la fonction de Heaviside et $F(s) = \mathcal{L} \{ f(t) \}$ pour $s \in \mathbb{C}$.

Cette relation généralise ainsi la formule suivante, bien connue dans le cas entier :

$$\mathcal{L} \{ \mathbf{I}_{t_0}^n f(t) \} = \frac{1}{s^n} F(s), \quad n \in \mathbb{N}^*. \quad (2.11)$$

2.3.2 Dérivation non-entière

Si la définition de l'intégrale non-entière est unique, il existe plusieurs définitions de la dérivation non-entière dont les plus usitées sont données ci-après.

Définition au sens de Grünwald-Letnikov

Pour une fonction f de $\mathbb{R}$ dans $\mathbb{C}$, la dérivée au sens Grünwald-Letnikov d'ordre $\nu \in \mathbb{R}_+$ est donnée par

$${}_g D^\nu f(t) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{1}{h^\nu} \sum_{i=0}^{+\infty} \binom{\nu}{i} (-1)^i f(t - ih), \quad (2.12)$$

où

$$\binom{\nu}{i} = \frac{\Gamma(\nu + 1)}{\Gamma(i + 1) \Gamma(\nu - i + 1)}$$

étend la définition usuelle du coefficient binomial.

Selon le signe de ν , l'opérateur D^ν correspond à la dérivée non-entière ($\nu > 0$) ou l'intégrale non-entière ($\nu < 0$).

Définition au sens de Riemann-Liouville

Soit $\nu \in \mathbb{R}_+$ et $n = \lceil \nu \rceil$ la partie entière supérieure de ν . La dérivée non-entière au sens de Riemann-Liouville d'une fonction f de $\mathbb{R}$ dans $\mathbb{C}$, est donnée par

$${}_r D_t^\nu f(t) = \frac{d^n}{dt^n} \mathbf{I}_{t_0}^{n-\nu} f(t) = \frac{d^n}{dt^n} \left[\frac{1}{\Gamma(n-\nu)} \int_{t_0}^t (t-\tau)^{n-\nu-1} f(\tau) d\tau \right], \quad (2.13)$$

pour $t > t_0$ et où $\mathbf{I}_{t_0}^{n-\nu}$ désigne l'intégrale de Riemann-Liouville d'ordre $n - \nu$.

Définition au sens de Caputo

Toujours avec $n = \lceil \nu \rceil$, la dérivée non-entière au sens de Caputo d'ordre $\nu \in \mathbb{R}_+$ est donnée par

$${}_c D_t^\nu f(t) = \mathbf{I}_{t_0}^{n-\nu} f^{(n)}(t) = \frac{1}{\Gamma(n-\nu)} \int_{t_0}^t (t-\tau)^{n-\nu-1} f^{(n)}(\tau) d\tau. \quad (2.14)$$

Cette définition résulte donc de la permutation dérivée-intégrale dans la définition au sens de Riemann-Liouville donnée dans (2.13).

Transformée de Laplace de la dérivée non-entière d'une fonction temporelle

Du fait de la non unicité de la définition de la dérivée non-entière (on en dénombre plus de 30 dans [83]), l'expression de sa transformée de Laplace n'est pas unique et fait apparaître des différences dans la manière de prendre en compte les conditions initiales.

Si les valeurs initiales des dérivées entières et non-entières des signaux relaxés à $t = t_0$ sont nulles, on peut montrer [87, 104] que les expressions des transformées de Laplace des dérivées au sens de *Riemann* et de *Caputo* sont identiques et se réduisent à :

$$\mathcal{L}\{D^\nu f(t)\} = s^\nu \mathcal{L}\{f(t)\}. \quad (2.15)$$

2.3.3 Caractérisation fréquentielle d'un dérivateur et d'un intégrateur d'ordre non-entier réel

Un dérivateur (ou un intégrateur) non-entier réel est tel que sa grandeur de sortie $y(t)$ correspond à la dérivée non-entière de sa grandeur d'entrée $u(t)$, soit :

$$y(t) = D^\nu u(t), \quad (2.16)$$

où $\nu \in \mathbb{R}$ désigne l'ordre de dérivation (ν pouvant être positif ou négatif, l'opérateur considéré étant alors soit un dérivateur, soit un intégrateur).

A l'aide de la relation (2.15) et en supposant donc que *tout le passé du signal $u(t)$ est nul*, la transformée de Laplace de la sortie $y(t)$ s'écrit :

$$Y(s) = s^\nu U(s) = D(s)U(s), \quad (2.17)$$

où $D(s)$ désigne la transmittance du dérivateur non-entier. La réponse fréquentielle de $D(s)$ est déduite en remplaçant s par $j\omega$, soit :

$$D(j\omega) = (j\omega)^\nu. \quad (2.18)$$

Définis comme le module et l'argument de $D(j\omega)$, le gain et la phase du dérivateur admettent des expressions de la forme :

$$\begin{cases} |D(j\omega)| = \omega^\nu \\ \arg(D(j\omega)) = \nu \frac{\pi}{2} \end{cases}. \quad (2.19)$$

Le système d'équation (2.19) révèle une propriété de ce type de dérivateur :

- le diagramme de gain est caractérisé par une droite oblique de pente 20ν dB par décade ;
- le diagramme de phase est caractérisé par une droite horizontale d'ordonnée $\varphi = \nu \frac{\pi}{2}$ rad.

La figure 2.1 représente les diagrammes de Bode de dérivateurs non-entiers réels pour des ordres de dérivation compris entre -1.5 et 1.5.

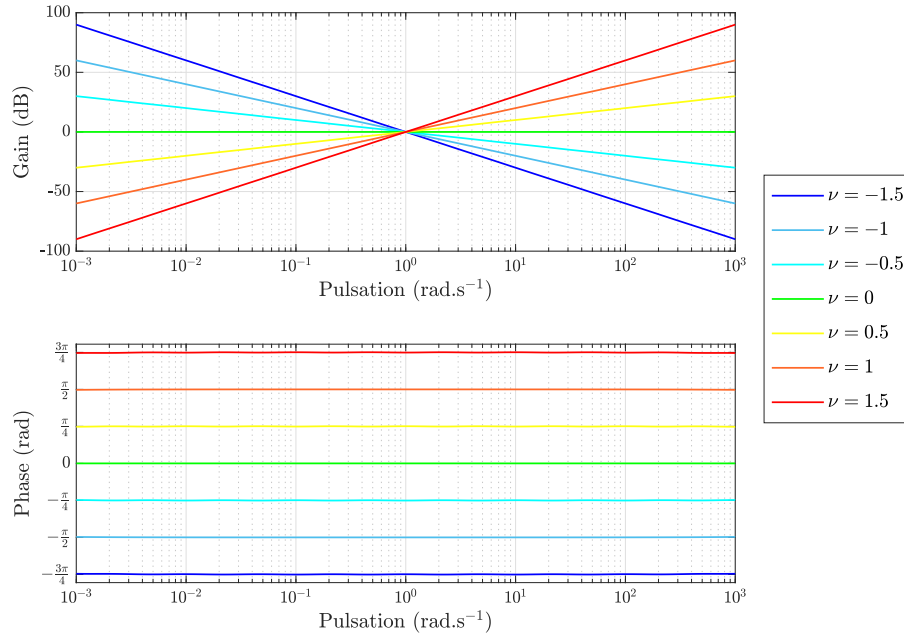


FIGURE 2.1: Diagrammes de Bode de dérivateurs non-entiers réels

Cela justifie l'utilisation des modèles non-entiers pour les systèmes ayant ce comportement fréquentiel (comportement de type puissance) dans une gamme de fréquence, ce qui est le cas des systèmes à mémoire longue de type puissance.

2.3.4 Fonction de transfert non-entière

Comme dans le cas entier (définition 8), on peut représenter un système linéaire par une fonction de transfert de la forme

$$G(s) = \frac{N(s)}{D(s)}. \quad (2.20)$$

À la différence du cas entier, N et D font intervenir des exposants non-entier de s . Ces exposants non-entier peuvent être appliqués directement sur s auquel cas on parle de **fonction de transfert non-entière explicite** ou sur une fonction de s auquel cas on parle de **fonction de transfert non-entière implicite**. Dans ce document, la forme explicite sera principalement utilisée.

Dans le cas explicite, on a donc

$$N(s) = \sum_{k=1}^N \alpha_k s^{\nu_k} \quad (2.21)$$

et

$$D(s) = \sum_{l=1}^M \beta_l s^{\mu_l}, \quad (2.22)$$

où $(N, M) \in \mathbb{N}^2$ et pour tout $k \in \{1..N\}$ et $l \in \{1..M\}$, $(\alpha_k, \beta_l) \in \mathbb{R}^+ \times \mathbb{R}^+$.

Lorsque tous les exposants ν_k de N et μ_l de D sont multiples d'un même réel ν , la fonction de transfert est dite commensurable et ν est appelé ordre de commensurabilité du modèle.

Les fonctions de transfert non-entières permettent de capturer des comportements particuliers, notamment ceux à mémoire longue de type puissance.

2.3.5 Pseudo représentation d'état

Pour les modèles non-entiers explicites d'ordre commensurable, il est possible de se placer dans un cadre analogue à ce qu'offre la représentation d'état pour les modèles entiers. On introduit alors la notion de pseudo représentation d'état apparue pour la première fois dans la littérature dans [101] :

$$\begin{cases} D_0^\nu x &= Ax(t) + Bu(t) \\ y &= Cx(t) + Du(t) \end{cases}, \quad \text{où } \forall t < 0, x(t) = u(t) = 0, \quad (2.23)$$

où ν est l'ordre commensurable, $x(t) \in \mathbb{R}^n$ est le vecteur de **pseudo états** et $A \in \mathbb{R}^{n \times n}$, $B \in \mathbb{R}^{n \times m}$, $C \in \mathbb{R}^{p \times n}$ et $D \in \mathbb{R}^{p \times m}$ sont des matrices à coefficients constants.

Il est important de préciser que $x(t)$ ne joue pas ici le rôle d'état du système. En effet, la connaissance de seulement $x(t_1)$ pour un instant $t_1 > t_0$ ne permet pas de déterminer $x(t)$ pour tout $t > t_1$.

La pseudo représentation d'état (2.23) est donc utile pour représenter le comportement entrée-sortie d'un système à conditions initiales nulles, mais ne renseigne pas sur le comportement interne du système.

2.3.6 Représentation diffusive

La représentation diffusive a été initialement introduite afin de transformer des opérateurs non entiers en système entrée-sortie plus classique [77, 78].

Considérons un modèle non-entier décrit par l'équation suivante :

$$\sum_{k=0}^{N_a} a_k D_{t_0}^{\nu_{a_k}} y(t) = \sum_{k=0}^{N_b} b_k D_{t_0}^{\nu_{b_k}} u(t), \quad (2.24)$$

avec a_k et b_k des réels. Ce modèle a pour fonction de transfert

$$H(s) = \frac{Y(s)}{U(s)}. \quad (2.25)$$

Sa réponse impulsionnelle est définie par (un exemple de calcul de la réponse impulsionnelle d'un intégrateur non entier est disponible dans l'annexe B)

$$h(t) = \mathcal{L}^{-1}\{H(s)\} = \frac{1}{2i\pi} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{pt} H(p) dp, \quad (2.26)$$

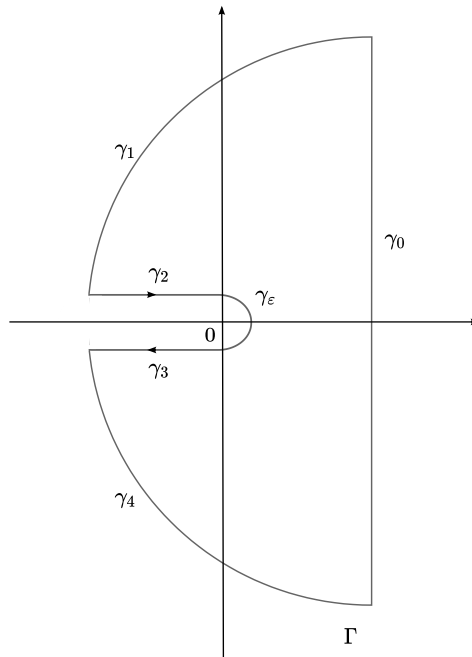
où c est choisi supérieur à la partie réelle des pôles de H et évite les points de branchements de H , c'est à dire dans notre cas, le domaine du plan complexe $] -\infty, 0]$ car p^ν n'a de sens que pour $p \in \mathbb{C} \setminus \mathbb{R}^-$ donc pour $\arg(p) \in] -\pi, \pi[$. En considérant le contour Γ de la figure 2.2, on a, d'après le théorème des résidus :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2i\pi} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{pt} H(p) dp &= \frac{1}{2i\pi} \int_{\gamma_0} e^{pt} H(p) dp \\ &= \frac{1}{2i\pi} \int_{\Gamma-\gamma_0} e^{pt} H(p) dp + \sum_{k=1}^n \text{Res}(e^{pt} H(p), p_k) \text{Ind}_\Gamma(p_k), \end{aligned} \quad (2.27)$$

où $\text{Res}(e^{pt} H(p), p_k)$ désigne le résidu de $e^{pt} H(p)$ en p_k et $\text{Ind}_\Gamma(p_k)$ est l'indice de Γ par rapport à p_k , c'est-à-dire le nombre de tours effectués autour de p_k en parcourant Γ .

Après simplification, on peut donc écrire

$$h(t) = h_a(t) + h_p(t), \quad (2.28)$$


 FIGURE 2.2: Exemple de chemin Γ utilisé pour le calcul de $h(t)$

où $h_p(t)$ se calcule à partir des pôles de H et $h_d(t)$ est liée à la partie diffusive du modèle :

$$h_d(t) = \int_0^{+\infty} e^{-t\xi} \mu(\xi) d\xi, \quad (2.29)$$

$\mu : \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{C}$ étant une fonction causale.

Dans le domaine de Laplace l'expression (2.29) devient :

$$H_d(p) = \int_0^{+\infty} \frac{\mu(\xi)}{p + \xi} d\xi. \quad (2.30)$$

On peut donc exprimer la sortie $y(t)$ du système par

$$y_d(t) = \int_0^{+\infty} \mu(\xi) w(t, \xi) d\xi, \quad (2.31)$$

où w est solution de l'équation différentielle

$$\frac{\partial w}{\partial t}(t, \xi) = -\xi w(t, \xi) + u(t), \quad \xi \in \mathbb{R}^+. \quad (2.32)$$

Définition 11 (Représentation diffusive). *Les équations (2.31) et (2.32) constituent la représentation diffusive du sous-modèle de réponse impulsionnelle $h_d(t)$ (2.29).*

2.3.7 Mise en évidence de différentes limitations

Les modèles non-entiers sont efficaces pour décrire les comportements entrée-sortie à mémoire longue de type puissance comme le montre de nombreux travaux [16, 132, 129, 56]. Ils présentent néanmoins, comme nous allons le voir par la suite, un certain nombre de limitations pour capturer certaines caractéristiques particulières des systèmes générant des comportement à mémoire longue.

Prise en compte des conditions initiales

Les différentes représentations de la dérivée non-entière prennent en compte de manières différentes les conditions initiales. Pour illustrer cela, considérons un système décrit par l'équation différentielle

$$D^\nu f(t) = u(t), \quad 0 < \nu < 1. \quad (2.33)$$

Ce système est considéré au repos pour $t < 0$.

En utilisant la définition de Riemann-Liouville, on peut montrer que la transformée de Laplace de f est donnée par [35]

$$\mathcal{L}\{D^\nu f(t)\} = s^\nu F(s) - \sum_{i=0}^{n-1} s^i [D^{\nu-i-1} f(t)]_{t=0}, \quad (2.34)$$

où $n = \lceil \nu \rceil$ et F est la transformée de Laplace de f .

Cela mène à la réponse temporelle suivante (voir [103]) :

$$f(t) = t_0 \frac{t^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)}, \quad t \geq 0. \quad (2.35)$$

En utilisant la définition de Caputo, on peut montrer que la transformée de Laplace de f est donnée par [35]

$$\mathcal{L}\{D^\nu f(t)\} = s^\nu F(s) - \sum_{i=0}^{n-1} s^{\nu-i-1} [D^i f(t)]_{t=0}. \quad (2.36)$$

Cela mène à la réponse temporelle suivante (voir [103]) :

$$f(t) = \frac{(2t_0)^\nu - t^\nu}{\Gamma(\nu + 1)} \mathcal{H}(t), \quad t \geq 0, \quad (2.37)$$

où $\mathcal{H}$ désigne la fonction de Heaviside (10). On constate donc que les relations (2.35) et (2.37) sont différentes et que la réponse du système dépend de la définition choisie pour la dérivée non-entière.

Une autre manière de mettre en évidence le problème de prise en compte des conditions initiales, qui ne nécessite pas de définition particulière de la dérivée non-entière, est de considérer un intégrateur non-entier au repos à $t = 0$, dont la pseudo représentation d'état est :

$$\begin{cases} D_0^\nu x(t) &= u(t) \\ y(t) &= x(t) \end{cases}, \quad \text{où } \forall t < 0, x(t) = u(t) = 0. \quad (2.38)$$

Dans le cas $\nu = 1$, le modèle (2.38) est la représentation d'état d'un intégrateur d'ordre entier. Pour un instant $t_1 > 0$, on peut déterminer la valeur $x(t_1)$ si les valeurs de u entre 0 et t_1 sont connues :

$$x(t_1) = \int_0^{t_1} u(\tau) d\tau = x_1 = \text{cste}, \quad (2.39)$$

et pour $t > t_1$, les valeurs $x(t)$ sont données par

$$\begin{aligned} x(t) &= \int_0^t u(\tau) d\tau \\ &= \underbrace{\int_0^{t_1} u(\tau) d\tau}_{x(t_1)} + \int_{t_1}^t u(\tau) d\tau. \end{aligned} \quad (2.40)$$

Ainsi, on peut calculer $x(t)$ si on connaît $x(t_1)$ et les entrées u entre t_1 et t . La sortie de l'intégrateur à un instant donné t_1 résume alors tout le passé du modèle et $x(t)$ correspond à l'état du système conformément à la définition 1.

Dans le cas d'un intégrateur non-entier $\nu \neq 1$, on peut calculer la valeur de x à un instant $t_1 > 0$ à l'aide de l'équation (2.7), si les entrées entre 0 et t_1 sont connues :

$$x(t_1) = \frac{1}{\Gamma(\nu)} \int_0^{t_1} (t_1 - \tau)^{\nu-1} u(\tau) d\tau = x_1 = \text{cste}, \quad (2.41)$$

et pour tout $t > t_1$ on a

$$\begin{aligned} x(t) &= \frac{1}{\Gamma(\nu)} \int_0^t (t - \tau)^{\nu-1} u(\tau) d\tau \\ &= \underbrace{\frac{1}{\Gamma(\nu)} \int_0^{t_1} (t - \tau)^{\nu-1} u(\tau) d\tau}_{\alpha(t) \neq x(t_1)} + \frac{1}{\Gamma(\nu)} \int_{t_1}^t (t - \tau)^{\nu-1} u(\tau) d\tau. \end{aligned} \quad (2.42)$$

Il y a deux différences notables par rapport au cas entier. La première est que le terme $\alpha(t)$ dans l'expression (2.42) dépend de l'instant t considéré. De plus, même si $x(t_1)$ est connu, il n'est pas possible de calculer $\alpha(t)$. La sortie de l'intégrateur non entier n'est donc pas un état pour le modèle non-entier. En effet, pour calculer $\alpha(t)$ pour tout t , il faut connaître $\underline{x}(t)$ pour tout $t \in [0, t_1]$, c'est-à-dire tout le passé du modèle, soit une infinité d'informations.

Constantes de temps infiniment rapides et infiniment lentes

Reconsidérons un modèle non-entier décrit par l'équation suivante :

$$\sum_{k=0}^{N_a} a_k D_{t_0}^{\nu_{a_k}} y(t) = \sum_{k=0}^{N_b} b_k D_{t_0}^{\nu_{b_k}} u(t), \quad (2.43)$$

avec a_k et b_k des réels. Ce modèle a pour fonction de transfert

$$H(s) = \frac{Y(s)}{U(s)}, \quad (2.44)$$

et sa réponse impulsionnelle est

$$h(t) = \mathcal{L}^{-1}\{H(s)\}. \quad (2.45)$$

La transformée de Laplace de la représentation diffusive de la sortie $y(t)$ est donnée par la relation (2.30), soit :

$$H(p) = \int_0^{+\infty} \frac{\mu(\xi)}{p + \xi} d\xi. \quad (2.46)$$

Cette relation met en évidence une distribution des pôles de 0 à $-\infty$ et donc, telle qu'annoncé au paragraphe précédent, des constantes de temps infiniment rapides et infiniment lentes. Cela induit une mémoire infinie et rend difficile l'établissement d'un lien entre les variables de ces modèles et les variables du système modélisé.

L'introduction des modèles non entiers et des limitations induites résulte de la volonté de généralisation d'outils de description interne initialement introduits pour des systèmes entiers. D'autres outils existaient néanmoins déjà dans la littérature sous la forme par exemple d'équations de Volterra qui sont à présent étudiées.

2.4 Équations de Volterra comme généralisation des modèles non-entiers

Les équations intégrales de Volterra de première espèce ont été introduites par Volterra [124] afin d'étudier la croissance démographique. Il s'agit de cas particulier d'équations intégrales, c'est-à-dire d'équation dont l'inconnue est une fonction qui apparaît sous l'intégrale.

Une équation intégrale de Volterra de première espèce est de la forme

$$v(t) = \int_a^t \eta(t, \tau) \phi(\tau) d\tau, \quad (2.47)$$

où dans ce modèle, v peut être vu comme la sortie, ϕ comme l'entrée, et η , appelé noyau du modèle est une fonction que l'on cherchera à déterminer en fonction du phénomène à modéliser.

Comme cela a été montré dans [97], ces équations peuvent être vues comme une généralisation des définitions de l'intégration non-entière. En effet, dans le cas de la définition de Caputo (2.14), le noyau est $\eta(t, \tau) = (t - \tau)^{n-\nu-1}$ et $\phi(\tau) = f(\tau)$.

Supposons maintenant que l'on considère l'opérateur de dérivation non-entière de Riemann-Liouville (2.13) et effectuons une intégration d'ordre 1 des deux cotés de la première relation de la pseudo représentation d'état (2.23). On obtient

$$\int_0^t \eta(t - \tau) x(\tau) d\tau = \int_0^t Ax(\tau) + Bu(\tau) d\tau, \quad (2.48)$$

où $\eta(t) = \frac{t^{-\nu}}{\Gamma(1-\nu)}$ et multiplie chaque composante du vecteur $x(\tau)$. On peut donc réécrire la relation (2.48) comme suit

$$\int_0^t (\eta(t - \tau)I_n - A) x(\tau) d\tau = \int_0^t Bu(\tau) d\tau, \quad (2.49)$$

où I_n désigne la matrice identité de taille n . Et donc la pseudo représentation d'état (2.23) peut se réécrire sous la forme d'une équation de Volterra de première espèce :

$$v(t) = \int_0^t (\eta(t - \tau)I_n - A) x(\tau) d\tau, \quad (2.50)$$

avec $v(t) = \int_0^t Bu(\tau) d\tau$. La relation (2.50) montre que la pseudo représentation d'état est un cas particulier d'équation de Volterra de première espèce.

Avec les équations de Volterra, il est donc possible de produire une plus large variété de comportements (en particulier des comportements de type puissance) qu'avec un modèle non-entier, en adaptant le noyau η .

De plus, les modèles basés sur les équations intégrales de Volterra permettent de limiter la mémoire en introduisant un paramètre T_f dans les bornes de l'intégrale de façon à omettre une partie du signal intégré, sans changer drastiquement la sortie (voir noyau η_5 au paragraphe 2.4.1) :

$$\int_{t-T_f}^t \eta(\tau - t) x(\tau) d\tau = v(t). \quad (2.51)$$

Via le changement de variable $\xi = t - \tau$, la relation (2.51) devient

$$\int_0^{T_f} \eta(\xi) x(t - \xi) d\xi = v(t). \quad (2.52)$$

Cette dernière relation montre que la connaissance de l'état $x(t)$ du modèle est nécessaire sur l'intervalle $[0, T_f]$ (une partie du passé seulement) pour calculer son évolution future. L'intérêt

de l'ajout d'un tel paramètre T_f permet de résoudre le problème d'initialisation du modèle. En effet l'initialisation de la relation (2.52) nécessite la connaissance de $x(t)$ sur $[t_0 - T_f, t_0]$, où t_0 désigne le temps initial, alors qu'avec un modèle non-entier, il faut la connaissance de $x(t)$ sur $[-\infty, t_0]$.

2.4.1 Différents noyaux pour les comportements à mémoire longue de type puissance

On considère un modèle basé sur une équation de Volterra de première espèce :

$$\int_0^t \eta(t - \tau)x(\tau) d\tau = v(t), \quad \text{avec } v(t) = \int_0^t u(\tau) d\tau, \quad y(t) = x(t). \quad (2.53)$$

La fonction $u(t) \in \mathbb{R}$ désigne l'entrée du modèle et la fonction $y(t) \in \mathbb{R}$ désigne sa sortie. Une transformée de Laplace dans la relation (2.53) donne

$$\widehat{\eta}(s)\widehat{x}(s) = \widehat{v}(s), \quad \text{avec } \widehat{v}(s) = \frac{1}{s}\widehat{u}(s), \widehat{y}(s) = \widehat{x}(s). \quad (2.54)$$

On a alors la fonction de transfert suivante :

$$\frac{\widehat{y}(s)}{\widehat{u}(s)} = \frac{1}{s\widehat{\eta}(s)}. \quad (2.55)$$

Cinq noyaux particuliers ont été étudiés dans [97], avec leurs limitations et leurs avantages face à la définition de la dérivation non-entière. Cette analyse est reprise ici à des fins didactiques.

Premier noyau

Dans un article de 1941, Cole et Cole [29] ont appliqué la dérivation non-entière à la modélisation de la dispersion et l'absorption de liquides et de diélectriques avec la formule

$$\varepsilon^* - \varepsilon_\infty = \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + (i\omega\tau_0)^{1-\nu}}, \quad (2.56)$$

où ε^* est la constante complexe diélectrique, ε_0 et ε_∞ sont les constantes diélectrique "statique" et de "fréquence infinie", $w = 2\pi$ fois la fréquence, et τ_0 est le temps de relaxation généralisé. Cette modélisation est considérée comme l'une des premières applications de la dérivation non-entière.

Cependant, au lieu d'utiliser la formule (2.56), le modèle de Volterra avec le noyau suivant aurait pu être utilisé :

$$\eta_1(t) = \frac{1}{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty} \mathcal{H}(t) + \frac{\tau^{1-\nu}}{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty} \frac{t^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)}, \quad (2.57)$$

où $\mathcal{H}(\cdot)$ désigne la fonction de Heaviside (10).

La transformée de Laplace de l'équation (2.57) est

$$\widehat{\eta}_1(s) = \frac{1}{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)s} + \frac{\tau^{1-\nu}}{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty} \frac{1}{s^\nu} = \frac{1}{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)s} (1 + (\tau_0 s)^{1-\nu}), \quad (2.58)$$

qui avec la fonction de transfert (2.55) donne la réponse en fréquence (2.56). Cette réponse met en évidence un comportement de type puissance d'ordre $\nu - 1$ sur le domaine $\left[\frac{1}{\tau_0}, \infty\right]$.

Cependant, le noyau (2.57) a une singularité en $t = 0$. De plus, la réponse impulsionnelle de la fonction de transfert (2.58) est

$$y_{\eta_1}(t) = \frac{1}{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty} \mathcal{H}(t) + \frac{\sin(\nu\pi)\tau_0^{1-\nu}}{\pi(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)\Gamma(\nu)} \int_0^\infty x^{-\nu} e^{-tx} dx, \quad (2.59)$$

dont la transformée de Laplace est

$$\widehat{y_{\eta_1}}(s) = \frac{1}{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)s} + \frac{\sin(\nu\pi)\tau_0^{1-\nu}}{\pi(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)\Gamma(\nu)} \int_0^\infty \frac{x^{-\nu}}{s+x} dx, \quad (2.60)$$

La relation (2.60) montre une distribution de pôles sur l'intervalle $[-\infty, 0]$. Et donc, le noyau η_1 possède des constantes de temps infiniment lentes et infiniment rapides et n'est donc pas un bon candidat pour outrepasser les inconvénients détaillés dans la partie 2.3.7.

Deuxième noyau

On considère désormais le noyau

$$\eta_2(t) = -\omega_{\min}(\omega_{\min}t)^{-\nu} e^{-\omega_{\min}t} E_{1,1-\nu}(\omega_{\min}t), \quad (2.61)$$

où $E_{\alpha,\beta}(z)$ est la fonction de Mittag-Leffler :

$$E_{\alpha,\beta}(z) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{z^k}{\Gamma(\alpha k + \beta)}. \quad (2.62)$$

Le noyau η_2 est appelé noyau pondéré de Mittag-Leffler, qui a été étudié dans différents contextes, en particulier pour les équations de diffusion généralisées [106, 107], pour les équations généralisées des ondes [108], et pour les équations généralisées de Langevin [67, 105].

La transformée de Laplace du noyau η_2 est donnée par

$$\widehat{\eta_2}(s) = \left(\frac{s}{\omega_{\min}} + 1 \right)^{\nu} \frac{1}{s} \quad (2.63)$$

et la fonction de transfert du modèle (2.53) est

$$\frac{\widehat{y}(s)}{\widehat{u}(s)} = \left(\frac{s}{\omega_{\min}} + 1 \right)^{-\nu}, \quad (2.64)$$

appelée fonction de transfert de Davidson-Cole qui montre un comportement de type puissance d'ordre $-\nu$ sur le domaine $[\omega_{\min}, \infty]$. Ce noyau possède également une singularité en $t = 0$. La réponse impulsionnelle de la transformée de Laplace (2.63) est

$$y_{\eta_2}(t) = \mathcal{H}(t) + \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_{\omega_{\min}}^{\infty} \frac{1}{x} \left(\frac{x}{\omega_{\min}} - 1 \right)^{-\nu} e^{-tx} dx. \quad (2.65)$$

La transformée de Laplace de la relation (2.65) donne

$$\widehat{y_{\eta_2}}(s) = \frac{1}{s} + \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_{\omega_{\min}}^{\infty} \frac{1}{x(s+x)} \left(\frac{x}{\omega_{\min}} - 1 \right)^{-\nu} e^{-tx} dx. \quad (2.66)$$

La relation (2.66) montre une distribution de pôles sur l'intervalle $[-\infty, -\omega_{\min}]$ et un pôle en 0 via le terme $\frac{1}{s}$. Ce noyau ne possède donc pas de constantes de temps infiniment lentes, ce qui peut simplifier l'initialisation de ce type de modèle. Cependant il possède des constantes infiniment rapides, ce qui peut poser des difficultés d'interprétation physique.

Troisième noyau

Le troisième noyau étudié est le suivant

$$\eta_3(t) = E_{\nu,1}(-(\omega_{\min}t)^\nu). \quad (2.67)$$

Sa transformée de Laplace est définie par

$$\eta_3(s) = \frac{\left(\frac{s}{\omega_{\min}}\right)^\nu}{s \left(\left(\frac{s}{\omega_{\min}}\right)^\nu + 1\right)}, \quad (2.68)$$

et la fonction de transfert du système (2.55) muni de ce noyau donne

$$\frac{\widehat{y}(s)}{\widehat{u}(s)} = \frac{\left(\left(\frac{s}{\omega_{\min}}\right)^\nu + 1\right)}{\left(\frac{s}{\omega_{\min}}\right)^\nu}. \quad (2.69)$$

Cette fonction de transfert possède un comportement de type puissance d'ordre $-\nu$ sur le domaine $[0, \omega_{\min}]$. De plus, comme $\lim_{s \rightarrow \infty} s\eta_3(s) \neq 0$, d'après le théorème de la valeur initiale, $\eta_3(t)$ n'a pas de singularité à $t = 0$. La réponse impulsionnelle de ce noyau est donnée par

$$y_{\eta_3}(t) = \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_0^\infty \frac{\left(\frac{x}{\omega_{\min}}\right)^\nu}{x \left(\left(\frac{x}{\omega_{\min}}\right)^{2\nu} + 2 \cos(\nu\pi) \left(\frac{x}{\omega_{\min}}\right)^\nu + 1\right)} e^{-tx} dx, \quad (2.70)$$

dont la transformée de Laplace est donnée par

$$\widehat{y_{\eta_3}}(s) = \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_0^\infty \frac{\left(\frac{x}{\omega_{\min}}\right)^\nu}{x \left(\left(\frac{x}{\omega_{\min}}\right)^2 + 2 \cos(\nu\pi) \left(\frac{x}{\omega_{\min}}\right) + 1\right) (s+x)} dx. \quad (2.71)$$

Cette dernière relation montre que $\eta_3(s)$ possède des pôles distribués sur l'intervalle $[-\infty, 0]$, comme le noyau $\eta_1(t)$.

Quatrième noyau

Le quatrième noyau étudié est

$$\eta_4(t) = \mathcal{H}(t) - E_{\nu,1}(-(\omega_{\min}t)^\nu). \quad (2.72)$$

La transformée de Laplace de ce noyau est donnée par

$$\eta_4(s) = \frac{1}{s \left(\left(\frac{s}{\omega_{\min}}\right)^\nu + 1\right)}, \quad (2.73)$$

et la fonction de transfert du système (2.55) muni de ce noyau donne

$$\frac{\widehat{y}(s)}{\widehat{u}(s)} = \left(\frac{s}{\omega_{\min}}\right)^\nu + 1. \quad (2.74)$$

Cette fonction de transfert a un comportement de type puissance d'ordre ν sur le domaine $[\omega_{\min}, \infty]$. Comme $\lim_{s \rightarrow \infty} s\eta_4(s) = 0$, le théorème de la valeur initiale montre que $\eta_4(t)$ n'a pas de singularité en $t = 0$. La réponse impulsionnelle de ce noyau est donnée par

$$y_{\eta_4}(t) = \mathcal{H}(t) - \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_0^\infty \frac{e^{-tx}}{x \left(\left(\frac{x}{\omega_{\min}} \right)^{2\nu} + 2 \cos(\nu\pi) \left(\frac{x}{\omega_{\min}} \right)^\nu + 1 \right)} dx, \quad (2.75)$$

dont la transformée de Laplace est donnée par

$$\widehat{y_{\eta_4}}(s) = \frac{1}{s} - \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_{\omega_{\min}}^\infty \frac{1}{x \left(\left(\frac{x}{\omega_{\min}} \right)^{2\nu} + 2 \cos(\nu\pi) \left(\frac{x}{\omega_{\min}} \right)^\nu + 1 \right) (s+x)} dx. \quad (2.76)$$

Cette dernière relation montre que $\eta_4(s)$ possède des pôles distribués sur l'intervalle $[-\infty, -\omega_{\min}]$ et un pôle en 0 via le terme $\frac{1}{s}$. Le noyau $\eta_4(t)$ ne possède donc pas de constantes de temps infiniment lentes, ce qui peut simplifier l'initialisation du problème dans lequel ce noyau est utilisé. Cependant il possède des constantes de temps infiniment rapides, ce qui peut, une fois de plus, poser des problèmes d'interprétation physique.

Cinquième noyau

Le dernier noyau étudié dans cette section est le suivant :

$$\eta_5(t) = (\omega_{\min})^\nu (\omega_{\max})^{1-\nu} e^{-\omega_{\min}t} F_1(1-\nu, 1, (\omega_{\min} - \omega_{\max})t) + K\delta(t) \quad (2.77)$$

avec

$$K = \frac{1}{2^{\frac{1-\nu}{2}}} \left(1 + \left(\frac{\omega_{\max}}{\omega_{\min}} \right)^2 \right)^{\frac{\nu}{2}}. \quad (2.78)$$

Dans la relation (2.77), la fonction $F_1(\cdot, \cdot, \cdot)$ est une fonction hypergéométrique conflente [114]. La transformée de Laplace de ce noyau est donnée par [42]

$$\widehat{\eta_5}(s) = \frac{1}{\left(\frac{s}{\omega_{\min}} + 1 \right)^\nu \left(\frac{s}{\omega_{\max}} + 1 \right)^{1-\nu}} + K, \quad (2.79)$$

et la fonction de transfert du système (2.55) muni de ce noyau est alors

$$\frac{\widehat{y}(s)}{\widehat{u}(s)} = \frac{1}{s\widehat{\eta_5}} = H_5(s) = \frac{\left(\frac{s}{\omega_{\min}} + 1 \right)^\nu \left(\frac{s}{\omega_{\max}} + 1 \right)^{1-\nu}}{s \left(1 + K \left(\frac{s}{\omega_{\min}} + 1 \right)^\nu \left(\frac{s}{\omega_{\max}} + 1 \right)^{1-\nu} \right)}. \quad (2.80)$$

Les diagrammes de gain de $\eta_5(s)$ et de $H_5(s)$ sont illustrés sur la figure 2.3 avec $\omega_{\min} = 0.001$ rad/s, $\omega_{\max} = 1000$ rad/s, $\nu = 0.5$. Ces fonctions de transferts montrent un comportement de type puissance sur le domaine $[\omega_{\min}, \omega_{\max}]$.

L'avantage du noyau η_5 est que ses pôles sont distribués sur une bande de fréquence limitée. En effet, la fonction de transfert

$$G(s) = \frac{1}{\left(\frac{s}{\omega_{\min}} + 1 \right)^\nu \left(\frac{s}{\omega_{\max}} + 1 \right)^{1-\nu}} \quad (2.81)$$

a une réponse impulsionnelle donnée par :

$$y_G(t) = \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \frac{\omega_{\min}^\nu}{\omega_{\max}^{\nu-1}} \int_{\omega_{\min}}^{\omega_{\max}} \frac{(\omega_{\max} - x)^{\nu-1}}{(x - \omega_{\min})^\nu} e^{-xt} dx. \quad (2.82)$$

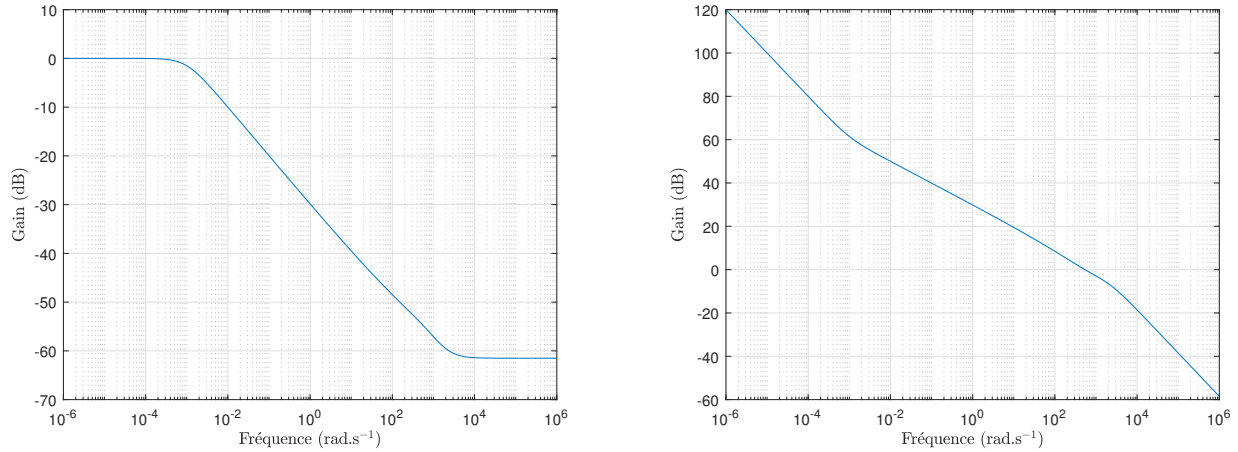


FIGURE 2.3: Diagrammes de gain de η_5 (a) et de H_5 (b) avec $\omega_{\min} = 0.001$ rd/s, $\omega_{\max} = 1000$ rd/s et $\nu = 0.5$

Cette relation montre que $G(s)$ a une distribution de pôle sur le domaine $[\omega_{\min}, \omega_{\max}]$, il en est donc de même pour η_5 .

Le modèle (2.53) est à présent modifié afin de limiter la mémoire du noyau η_5 , soit :

$$\int_{t-T_f}^t \eta_5(t-\tau) x(\tau) d\tau = v(t) \quad \text{avec } v(t) = \int_0^t u(\tau) d\tau, \quad y(t) = x(t). \quad (2.83)$$

Avec le changement de variable $\rho = t - \tau$ (et donc $d\rho = -d\tau$), la relation (2.83) devient :

$$\int_0^{T_f} \eta_5(\rho) x(t-\rho) d\rho = v(t) \quad \text{avec } v(t) = \int_0^t u(\tau) d\tau, \quad y(t) = x(t). \quad (2.84)$$

La transformée de Laplace de cette dernière relation est

$$\widehat{x}(s) \int_0^{T_f} \widehat{\eta}_5(\rho) e^{-\rho s} d\rho = v(s) \quad \text{avec } \widehat{v}(s) = \frac{1}{s} \widehat{u}(s), \quad \widehat{y}(s) = \widehat{x}(s) \quad (2.85)$$

et donc la fonction de transfert $H_5^{T_f}(s)$ est donnée par

$$H_5^{T_f}(s) = \frac{\widehat{y}(s)}{\widehat{u}(s)} = \frac{1}{s \int_0^{T_f} \widehat{\eta}_5(\rho) e^{-\rho s} d\rho}. \quad (2.86)$$

La figure 2.4 compare le diagramme de gain de $H_5^{T_f}(s)$ (calculée numériquement) avec le diagramme de gain de $H_5(s)$ donné par la relation (2.80). La réponse fréquentielle de $H_5^{T_f}(s)$ est similaire à celle de $H_5(s)$ sous la condition $T_f > \frac{5}{\omega_{\min}}$. Dans une telle situation, le paramètre T_f peut être vu comme la taille de la mémoire du noyau, qui est liée à la fréquence de coupure en dessous de laquelle la réponse en fréquence a un gain constant.

2.4.2 Méthode de détermination d'un noyau

La question qui se pose à présent est de savoir comment déterminer à partir d'un jeu de mesures $\{x(t), u(t)\}$, une expression du noyau. Une méthode numérique permettant d'appréhender ce problème est maintenant proposée.

En dérivant la relation (2.47), on obtient la relation suivante, qui est appelée équation linéaire de Volterra de seconde espèce :

$$x(t) = u(t) + \int_0^t \eta(\tau) x(t-\tau) d\tau. \quad (2.87)$$

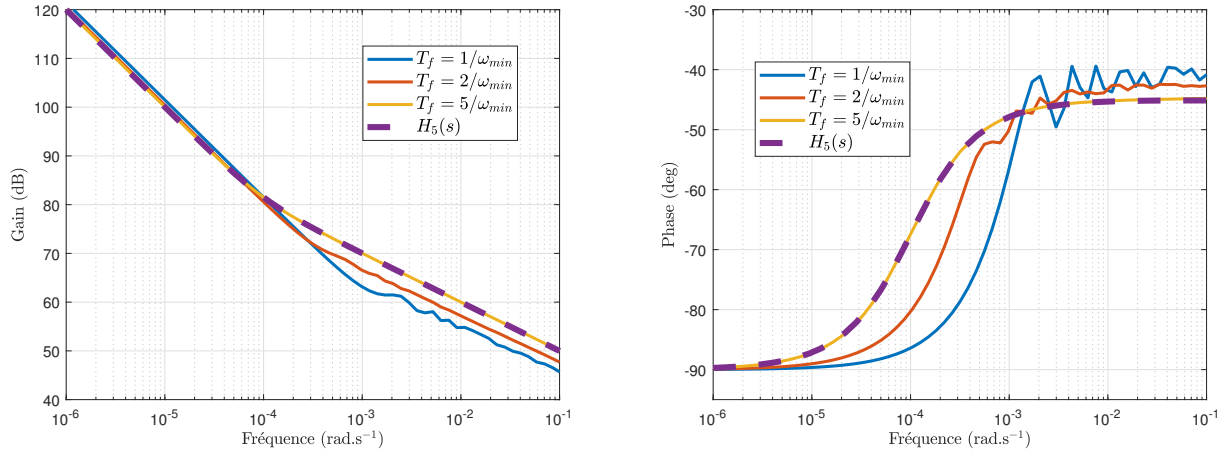


FIGURE 2.4: Comparaison des diagrammes de gains de $H_5^{T_f}(s)$ et de $H_5(s)$, avec $\nu = 0.5$, $\omega_{min} = 0.0001 \text{ rad.s}^{-1}$, $\omega_{max} = 1000 \text{ rad.s}^{-1}$

Soit $x(t)$ la sortie d'un système linéaire en réponse à une entrée $u(t)$. Le signal $x(t)$ est modélisé par l'équation de Volterra de la relation (2.87) qui implique un noyau η qui peut être déterminé numériquement comme suit. Une discrétisation de la relation (2.87) est effectuée en utilisant la méthode des trapèzes (avec un temps d'échantillonnage T_s), qui donne :

$$\begin{aligned}
 x(T_s) &= u(T_s) + \int_0^{T_s} \eta(\tau) x(t - \tau) d\tau \\
 &= u(T_s) + \frac{\eta(T_s)x(T_s - T_s) + \eta(0)x(T_s - 0)}{2} T_s \\
 x(2T_s) &= u(2T_s) + \int_0^{T_s} \eta(\tau) x(t - \tau) d\tau \\
 &\quad + \int_{T_s}^{2T_s} \eta(\tau) x(t - \tau) d\tau \\
 &= u(2T_s) + \frac{\eta(T_s)x(2T_s - T_s) + \eta(0)x(2T_s - 0)}{2} T_s \\
 &\quad + \frac{\eta(2T_s)x(2T_s - 2T_s) + \eta(T_s)x(2T_s - T_s)}{2} T_s \\
 &\quad \vdots
 \end{aligned} \tag{2.88}$$

dont l'écriture matricielle est

$$\underbrace{\begin{bmatrix} x(T_s) & x(0) & 0 & \cdots & \cdots \\ x(2T_s) & 2x(T_s) & x(0) & 0 & \cdots \\ x(3T_s) & 2x(2T_s) & 2x(T_s) & x(0) & 0 & \cdots \\ \vdots & \ddots & & & \end{bmatrix}}_X \underbrace{\begin{bmatrix} \eta(0) \\ \eta(T_s) \\ \eta(2T_s) \\ \vdots \end{bmatrix}}_\eta = \underbrace{\begin{bmatrix} x(T_s) - u(T_s) \\ x(T_s) - u(T_s) \\ x(3T_s) - u(3T_s) \\ \vdots \end{bmatrix}}_U. \tag{2.89}$$

Les échantillons $\eta(k)$ peuvent être obtenus en résolvant le système linéaire (2.89). Avec une méthode des moindres carrés, une fonction analytique $\eta(t)$ peut alors être utilisée pour fitter les échantillons $\eta(k)$.

À titre d'exemple, supposons que le signal $x(t)$ corresponde à la réponse indicielle de la fonction de transfert non entière

$$F(s) = \frac{1}{\left(\frac{s}{\omega_b} + 1\right)^\nu}, \quad \text{avec } \omega_b = 10^{-3} \text{ et } \nu = 0.2. \quad (2.90)$$

La réponse temporelle est donnée par

$$f(t) = \frac{e^{-t/(2\omega_b)} t^\nu}{\nu(\nu+1)} \left(\left(\frac{t}{\omega_b}\right)^{-\nu/2} W_M\left(\nu, \nu/2 + 1/2, \frac{t}{\omega_b}\right) + (\nu+1)e^{-t/(2\omega_b)} \right), \quad (2.91)$$

où $W_M(\cdot, \cdot, \cdot)$ est la fonction de Whittaker M .

Les échantillons $\eta(k)$ sont ensuite calculés en utilisant la relation (2.89). La fonction suivante,

$$\eta_1(t) = a_0 t^{\nu-1} \exp(-t/\omega_b). \quad (2.92)$$

qui est proche de la réponse impulsionnelle de $F(s)$, est d'abord considérée pour fitter les échantillons $\eta(k)$ en utilisant la relation (2.89).

La réponse de l'équation (2.87) avec le noyau $\eta_1(t)$ est désignée par $x_1(t)$ et est comparée à la réponse $x(t)$ du modèle non entier (2.90) dans la figure 2.5.

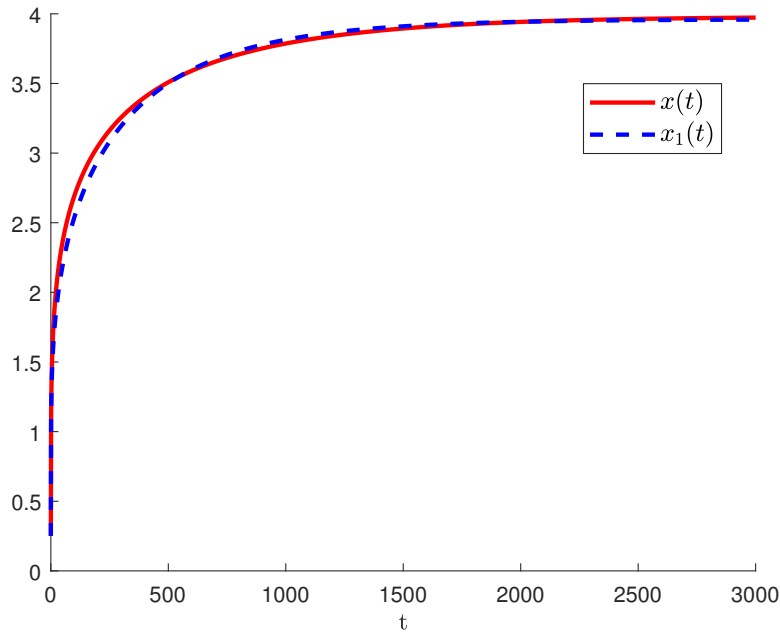


FIGURE 2.5: Comparaison du modèle non entier (2.90) et de la réponse $x_1(t)$ du modèle (2.87) avec le noyau $\eta_1(t)$ de l'équation (2.92)

Après optimisation, l'erreur quadratique entre $x(t)$ et $x_1(t)$ est la suivante (se référer à l'annexe E pour la méthode d'estimation des paramètres, méthode utilisée dans tous les problèmes d'optimisation du manuscrit) :

$$\varepsilon_1 = \sum (x_1(i) - x(i))^2 = 5.5985. \quad (2.93)$$

Le noyau (2.92) est singulier. Pour éviter cette singularité et avoir un fittage plus précis de $\eta(k)$, un autre noyau doit être trouvé. Pour cela, on suppose qu'un système physique a un

comportement de type passe-bas, et donc que son comportement à basse fréquence peut être capturé par une fonction de transfert de la forme

$$H(s) = \frac{1}{p^k(p + \alpha)}, \quad k \in \mathbb{N}. \quad (2.94)$$

Soit $h(t)$ la transformée de Laplace inverse de $H(s)$. Pour prendre en compte le comportement du système en moyenne fréquence (fréquences inférieures à $1/T_s$), la fonction $h(t)$ est complétée par une fonction de la forme

$$g(t) = \frac{\sum_{k=1}^{n_a} a_k t^k}{\sum_{k=1}^{n_b} b_k t^k}, \quad \text{avec } a_0 = 1. \quad (2.95)$$

Ainsi, pour le problème considéré (car $k = 0$ dans la relation (2.94)), une fonction analytique possible pour fitter les échantillons $\eta(k)$ est :

$$\eta_2(t) = h(t)g(t) = \exp(-\alpha t) \frac{1 + a_1 t + a_2 t^2}{b_0 + b_1 t + b_2 t^2}. \quad (2.96)$$

Dans la figure 2.6 sont comparés $\eta(k)$ et le noyau $\eta_2(t)$ après optimisation.

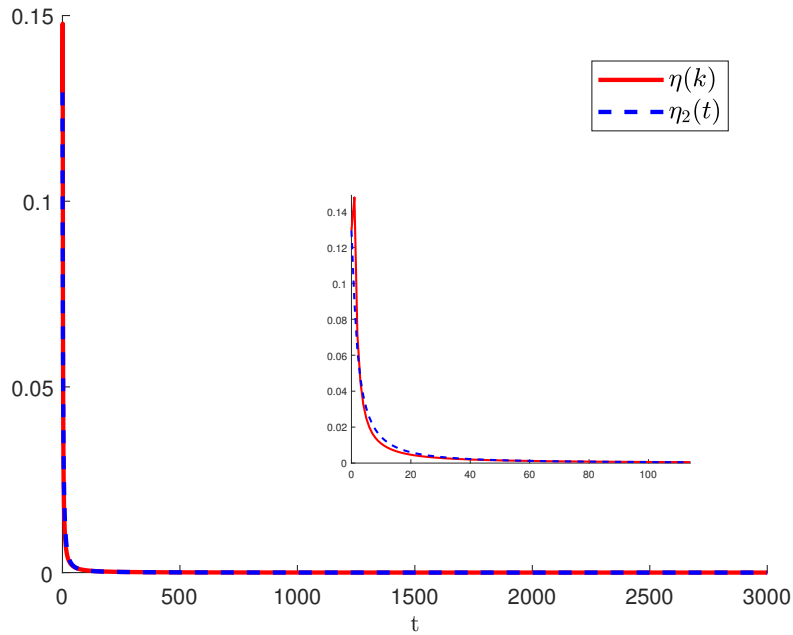


FIGURE 2.6: Fittage du noyau $\eta(t)$ de la relation (2.96)

L'erreur quadratique entre $\eta_2(k)$ et $\eta(kT_s)$ est de

$$\varepsilon_2 = \sum (\eta_2(i) - \eta(i))^2 = 3.6892 \times 10^{-3}. \quad (2.97)$$

La sortie du modèle (2.87) avec noyau $\eta_2(t)$, noté $x_2(t)$ est représentée par la figure 2.7 et est comparée à la réponse du modèle non entier $x(t)$.

L'erreur quadratique entre $x_2(t)$ et $f(t)$ est la suivante

$$\varepsilon_3 = \sum (x_2(i) - x(i))^2 = 3.11 \times 10^{-1}. \quad (2.98)$$

La comparaison révèle une erreur très faible. Ainsi, le noyau proposé de la forme

$$\eta(t) = h(t)g(t) \quad (2.99)$$

est un candidat possible et intéressant pour le fittage des échantillons $\eta(k)$.

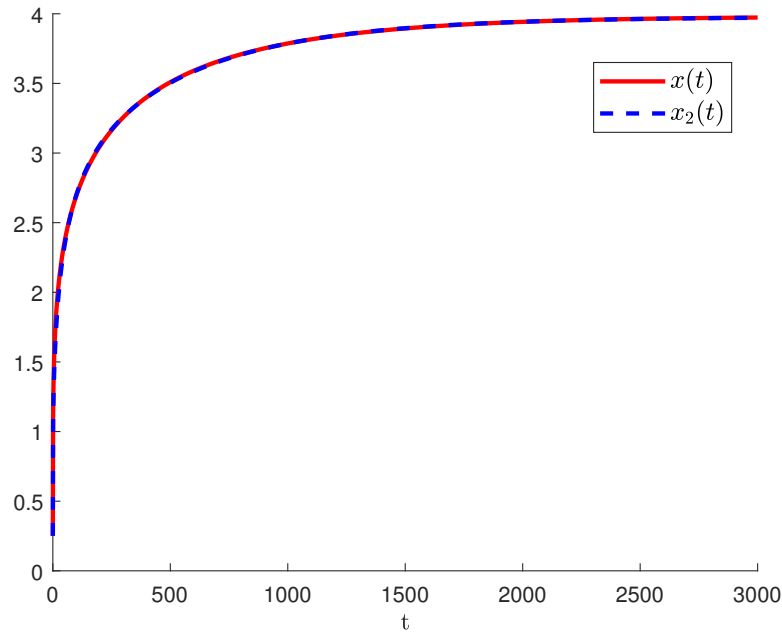


FIGURE 2.7: Sortie $x_2(t)$ du modèle (2.87) avec noyau $\eta_2(t)$ (eq. 2.96) comparé à la réponse indicielle $f(t)$ (eq. 2.91)

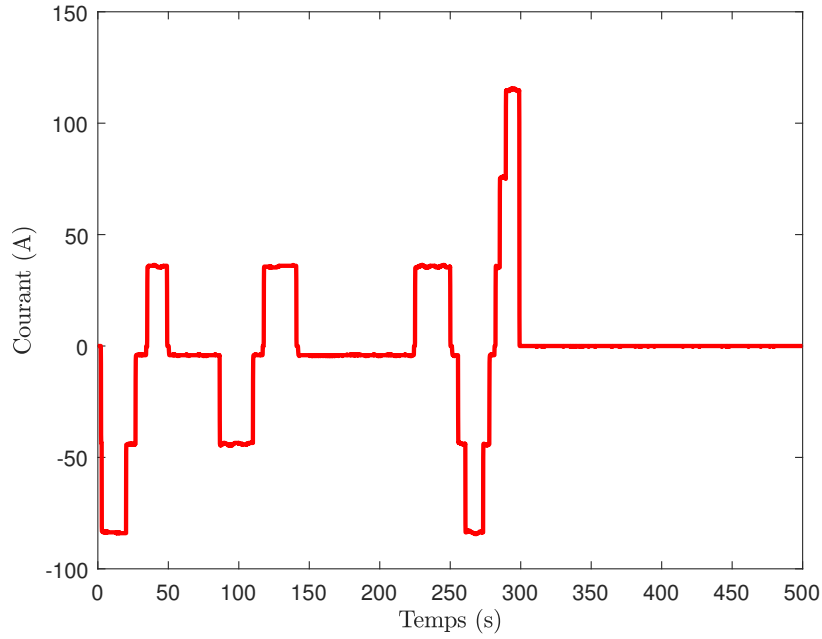
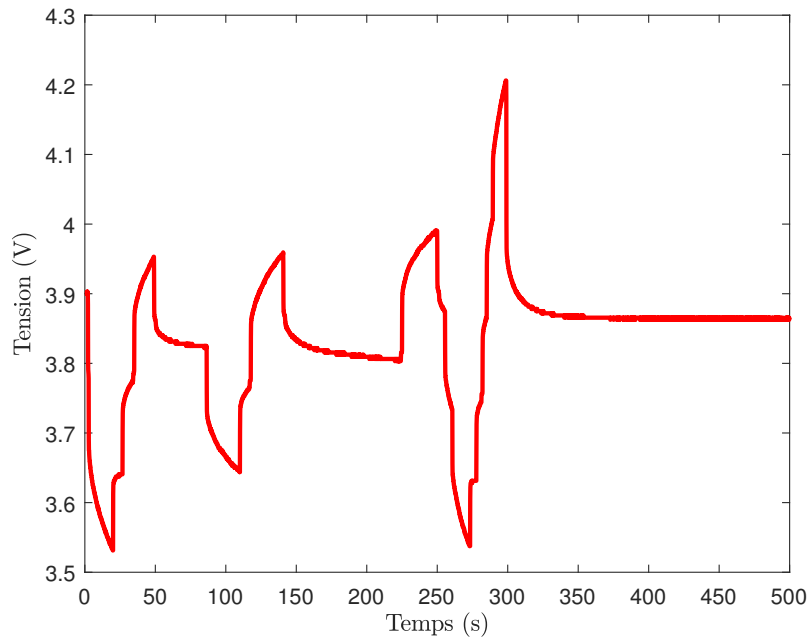
α	4.2697×10^{-5}
a_1	7.7946×10^{-3}
a_2	2.3453×10^{-5}
b_0	6.7661
b_1	4.2179
b_2	2.3728×10^{-1}

TABLE 2.1: Paramètres de $\eta_2(t)$ de la relation (2.96)

2.4.3 Application à la modélisation d'une cellule lithium-ion

Les données utilisées dans ce paragraphe proviennent de [102] et sont issues d'une collaboration avec la société PSA Peugeot-Citroën. L'entrée de la cellule est le courant et la sortie sa tension. Le courant entrant en fonction du temps est représenté sur la figure 2.8 et la tension de sortie résultante $U(t)$ en fonction du temps est représentée sur la figure 2.9. L'objectif est à présent de modéliser le comportement entrée-sortie de cette cellule au moyen d'une équation de Volterra et de comparer avec une modélisation au moyen d'un modèle non entier.

Sous l'hypothèse d'une particule sphérique matérielle dans les électrodes et en considérant que l'électrode positive est limitante en termes de comportement dynamique, une pile lithium-ion peut être modélisée par le modèle mono électrode de la figure 2.10 [102]. Ce modèle contient une résistance R pour prendre en compte les résistances internes et de connexion, qui peuvent être estimées par la chute de tension qui apparaît lorsqu'un courant en échelon est appliqué. La fonction φ relie la tension en circuit ouvert (OCV) à la concentration en lithium à la surface de la sphère. Elle peut être obtenue en mesurant la tension de la cellule au repos pour différents états de charge de la cellule. Pour la cellule considérée, cette fonction non linéaire est fittée par un polynôme de degré 12 (voir [102] pour le résultat). L'état initial de la batterie est défini par la concentration $C_S(0)$, et la tension de la cellule est $U(t)$. La fonction $G(s)$ permet de modéliser la diffusion du lithium à l'intérieur de la sphère. Le courant entrant au cours du temps est représenté sur la figure 2.8 et la tension de sortie résultante $U(t)$ au cours du temps est

FIGURE 2.8: *Courant entrant appliqué à la cellule*FIGURE 2.9: *Réponse en tension de la cellule au courant de la figure 2.8*

représentée sur la figure 2.9.

Modèle non-entier

Tout d'abord, afin d'avoir un élément de comparaison, la partie diffusion est modélisée en utilisant la fonction de transfert non-entière suivante :

$$G(s) = \frac{K}{s} \frac{(1 + \frac{s^n}{w_1})(1 + \frac{s^n}{w_2})}{(1 + \frac{s^n}{w_3})}. \quad (2.100)$$

Après une optimisation par moindres carrés, visant à minimiser les différences entre le modèle

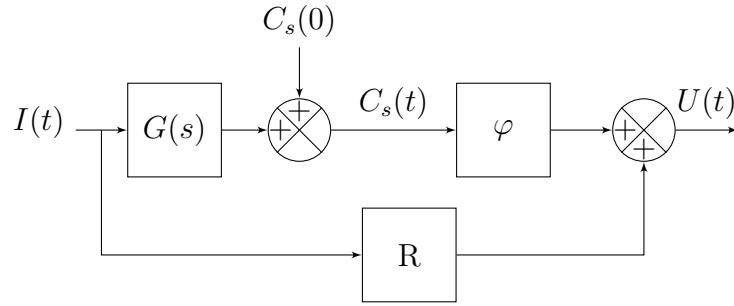
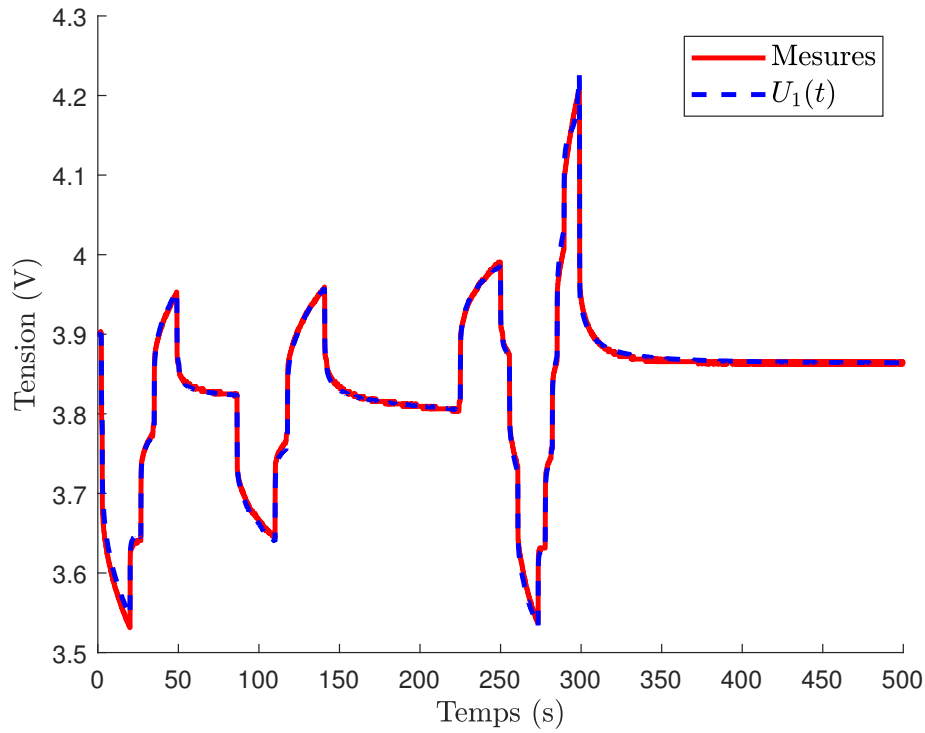


FIGURE 2.10: Modèle de cellule lithium-ion proposé dans [102]

et la sortie de la pile, les paramètres rassemblés dans le tableau 2.2 ont été obtenus pour la fonction de transfert $G(s)$. La réponse $U_1(t)$ du modèle de la figure 2.10 est comparée à la tension de sortie de la cellule de la figure 2.11.

FIGURE 2.11: Tension $U(t)$ comparée à la réponse du modèle de la figure 2.10 avec la fonction de transfert non-entière (2.100)

K	4.3317×10^{-5}
n	7.1958×10^{-1}
ω_1	4.0075×10^{-2}
ω_2	1.1394×10^3
ω_3	4.3253

TABLE 2.2: Paramètres de $G(s)$ issus de la relation (2.100) pour la modélisation de la tension de sortie de la cellule

L'erreur quadratique entre $U(t)$ et $U_1(t)$ est donnée par :

$$\varepsilon_4 = \sum |U(i) - U_1(i)|^2 = 1.250 \times 10^{-1}. \quad (2.101)$$

Modèle de Volterra

La partie diffusion du modèle décrit dans la figure 2.10 est maintenant modélisée par l'équation de Volterra (2.87) dans laquelle le noyau $\eta(t)$ est défini par la relation :

$$\eta_2(t) = -\exp(-\alpha t) \frac{1 + a_0 t^2}{a_1 + a_2 t^2 + a_3 t^3}, \quad (2.102)$$

où la fonction $u(t)$ (relation (2.87)) est définie comme $\int I(t)$. Par conséquent, ce modèle implique le même nombre de paramètres que la fonction de transfert (2.100). Après optimisation, visant à minimiser les différences entre $U(t)$ et $U_2(t)$, où $U_2(t)$ désigne la sortie du modèle de la cellule basé sur l'équation de Volterra, les paramètres obtenus pour $\eta_2(t)$ sont rassemblés dans le tableau 2.3.

L'erreur quadratique entre les données de tension $U(t)$ et le modèle de cellule est alors donnée par

$$\varepsilon_5 = \sum (U(i) - U_2(i))^2 = 1.1567 \times 10^{-1}. \quad (2.103)$$

Cette erreur est légèrement plus faible qu'avec le modèle non entier avec le même nombre de paramètres. La tension de sortie de la cellule $U(t)$ et la sortie $U_2(t)$ du modèle de la figure 2.10 utilisant le modèle de Volterra (2.87) pour la partie diffusion sont comparées dans la figure 2.12.

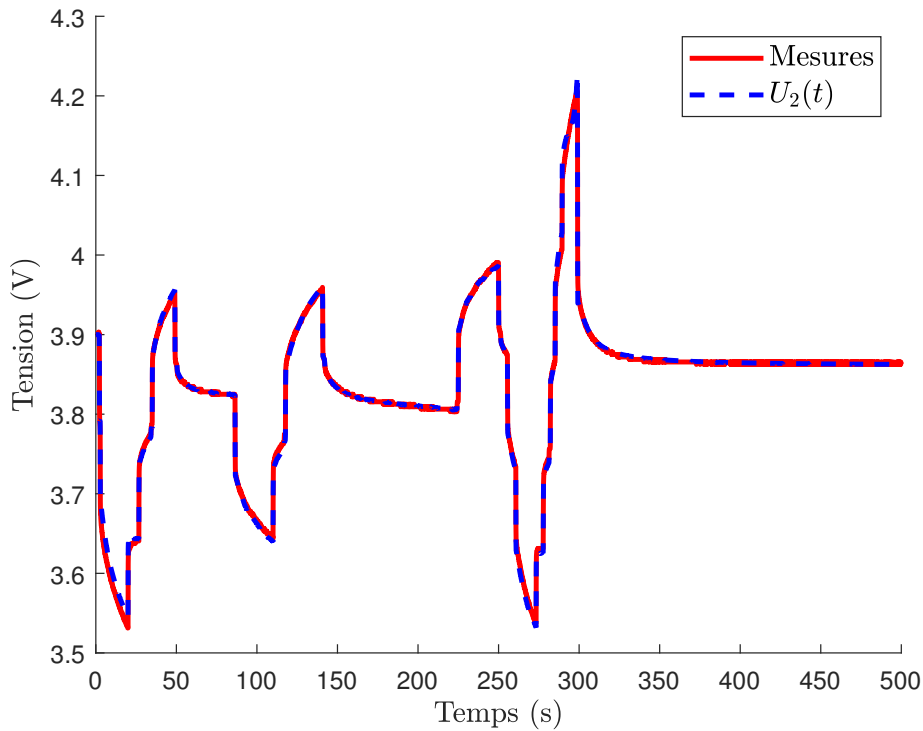


FIGURE 2.12: Tension $U(t)$ comparée à la réponse $U_2(t)$ du modèle de Volterra (2.87) avec le noyau $\eta_2(t)$ de la relation (2.102)

Limitation de la mémoire du modèle

Comme vu précédemment, il est possible de limiter la mémoire du modèle en modifiant la borne de l'intégrale définissant le modèle de Volterra sans affecter de manière significative son comportement entrée-sortie. La relation (2.87) devient ainsi :

$$x(t) = u(t) + \int_0^{T_f} \eta(\tau) x(t - \tau) d\tau, \quad x(t) = 0 \text{ pour } t < 0 \quad (2.104)$$

a_0	1.0671×10^{-1}
a_1	8.9930×10^{-4}
a_2	2.8905×10^{-4}
a_3	1.1741×10^{-5}
α	3.7169×10^{-3}

TABLE 2.3: Paramètres du noyau $\eta_2(t)$ de la relation (2.102) pour la modélisation de la tension de sortie $U(t)$

où T_f caractérise la longueur de la mémoire.

En choisissant correctement T_f , les comportements de (2.104) et (2.87) deviennent alors très proches. Afin de définir une règle pour le choix de T_f , on compare maintenant les réponses en fréquence du transfert $x(s)/u(s)$ résultant de la relation (2.104) pour plusieurs valeurs de T_f .

Comme la transformée de Laplace de la relation (2.104) est

$$x(s) = u(s) + \int_0^{T_f} \eta(\tau) e^{-s\tau} x(s) \, d\tau, \quad (2.105)$$

la fonction de transfert $x(s)/u(s)$ est donc donnée par

$$\frac{x(s)}{u(s)} = \frac{1}{1 - \int_0^{T_f} \eta(\tau) e^{-s\tau} \, d\tau}. \quad (2.106)$$

Pour $s = j\omega$, l'intégrale dans (2.106) peut être calculée numériquement et donc, avec $\Delta = \frac{T_f}{N}$:

$$\frac{x(j\omega)}{u(j\omega)} \approx \frac{1}{1 - \sum_{k=0}^{N-1} \eta(k\Delta) e^{-j\omega k\Delta}}. \quad (2.107)$$

Les réponses en fréquence de $x(j\omega)/u(j\omega)$ pour $\eta(t) = \eta_2(t)$ (relation (2.102)) et pour $T_f = 0.05/\alpha$, ; $T_f = 0.1/\alpha$, ; $T_f = 1/\alpha$, ; $T_f = 5/\alpha$ et $T_f = 10/\alpha$ sont représentées dans la figure 2.13. Cette figure montre que pour $T_f \geq 5/\alpha$ les diagrammes de Bode de $x(j\omega)/u(j\omega)$ sont similaires et qu'il n'est pas utile de choisir $T_f \gg 5/\alpha$.

2.5 Modèles à retards distribués

Les modèles à retards sont une classe de modèles faisant intervenir des retards ou délais sur leurs états, ce qui permet de les écrire sous la forme :

$$\frac{dx(t)}{dt} = F(x(t), x_t), \quad (2.108)$$

où la fonction, $F : \mathbb{R} \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$ dépend de l'état $x(t)$ et de l'état retardé x_t .

Il existe différentes façons d'exprimer ce retard. Dans le cas d'un retard simple, la dérivée de l'état ne dépend que d'un seul état passé : $x_t = x(t - \tau)$. L'exemple le plus simple d'un tel système à retard est le suivant

$$\frac{dx(t)}{dt} = x(t - \tau). \quad (2.109)$$

Plus généralement, un système à retards discrets est de la forme

$$\frac{dx(t)}{dt} = F(x(t), (x(t - \tau_1), x(t - \tau_2), \dots, x(t - \tau_N))). \quad (2.110)$$

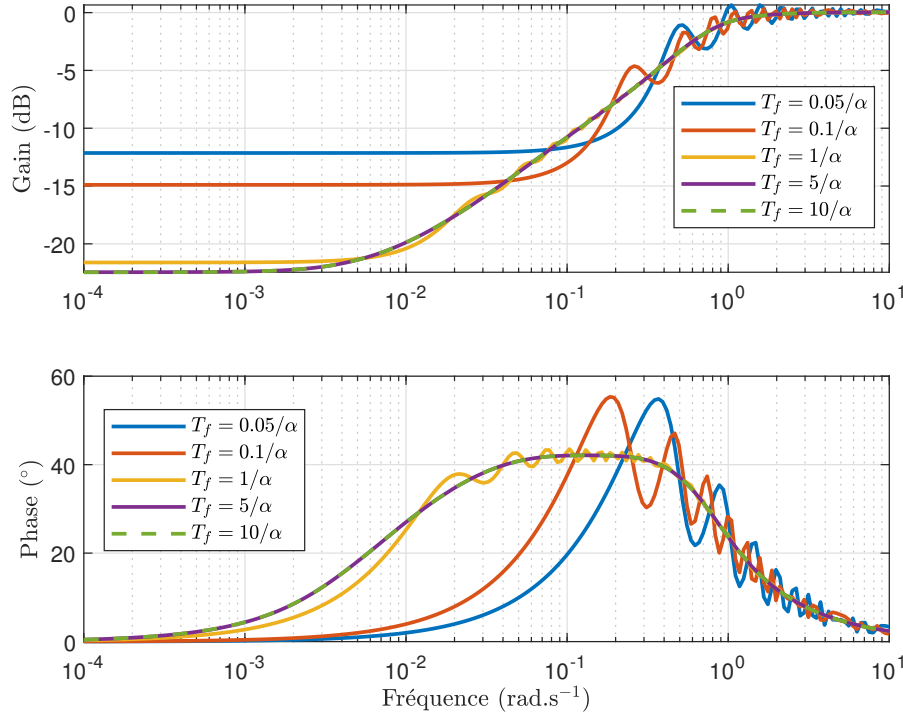


FIGURE 2.13: Réponses fréquentielles de $x(j\omega)/u(j\omega)$ pour $\eta(t) = \eta_2(t)$, pour plusieurs valeurs de T_f

Ce type de système est utilisé pour modéliser des phénomènes de synchronisation (comme dans le cas d'oscillateurs opto-électroniques [126], ou dans le cas de réseau complexes [84]).

Les modèles à retards distribués sont quant à eux une classe de modèles basés sur des équations intégral-différentielles généralisant le cas des modèles à retards discrets. Ces modèles sont décrits par une équation de la forme

$$\frac{dx(t)}{dt} = F(x(t), \int_0^\infty \eta(\tau)x(t-\tau) d\tau). \quad (2.111)$$

Une étude détaillée de ce type de modèles est disponible dans [60, 92, 89]. La section qui suit présente deux modèles à retards distribués qui ont été étudiés dans [98] et qui permettent de capter des comportements à mémoire longue de type puissance.

2.5.1 Modèles à retards distribués présentant un comportement à mémoire longue de type puissance

Le système à retard suivant est considéré :

$$\frac{dx(t)}{dt} = A_0x(t) + A_1 \int_0^{T_f} \eta(\tau)x(t-\tau) d\tau + Bu(t), \quad (2.112)$$

avec

$$\eta(t) = C_0 \frac{t^{\nu-1} e^{-\omega_l t}}{\Gamma(\nu)} \quad \text{avec } 0 < \nu < 1 \text{ et } \omega_l \in \mathbb{R}_+^* \quad (2.113)$$

et

$$C_0 = (1 + \omega_l^2)^{\frac{\nu}{2}} \quad ; \quad \Gamma(\nu) = \int_0^\infty t^{\nu-1} e^{-t} dt. \quad (2.114)$$

La transformée de Laplace de la relation (2.112) est donnée par

$$s\widehat{x}(s) = A_0\widehat{x}(s) + A_1 \int_0^{T_f} \eta(\tau)\widehat{x}(s)e^{-\tau s} d\tau + B\widehat{u}(s) \quad (2.115)$$

et donc

$$s\widehat{x}(s) = A_0\widehat{x}(s) + A_1\widehat{x}(s) \int_0^{T_f} \eta(\tau)e^{-\tau s} d\tau + B\widehat{u}(s). \quad (2.116)$$

L'intégrale suivante est maintenant étudiée

$$I(s) = \int_0^{T_f} \eta(\tau)e^{-\tau s} d\tau \quad (2.117)$$

avec $\eta(t)$ donné par la relation (2.113). Après calcul, l'intégrale $I(s)$ devient

$$I(s) = \frac{C_0 (T_f)^\nu}{\Gamma(1+\nu)} {}_1F_1(\nu, 1+\nu, T_f(s + \omega_l)) \quad (2.118)$$

où ${}_1F_1(a, b, z)$ est une fonction hypergéométrique confluyente (aussi appelée fonction de Kummer), définie par

$${}_1F_1(a, b, z) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(a)_n}{(b)_n} \frac{z^n}{n!} \quad (2.119)$$

avec

$$(a)_n = a(a+1)(a+2)\dots(a+n-1), \quad (a)_0 = 1. \quad (2.120)$$

Les diagrammes de gain et de phase de l'intégrale $I(s)$ donnée par la relation (2.118) sont représentés sur la figure 2.14 pour plusieurs valeurs de ν et sur la figure 2.15 pour plusieurs valeurs de T_f . Ces figures montrent que

- le paramètre ν affecte l'ordre du comportement de type puissance,
- le paramètre T_f tel que $T_f = \frac{10}{\omega_l}$ contrôle la bande de fréquence sur le quel le comportement est de type puissance.

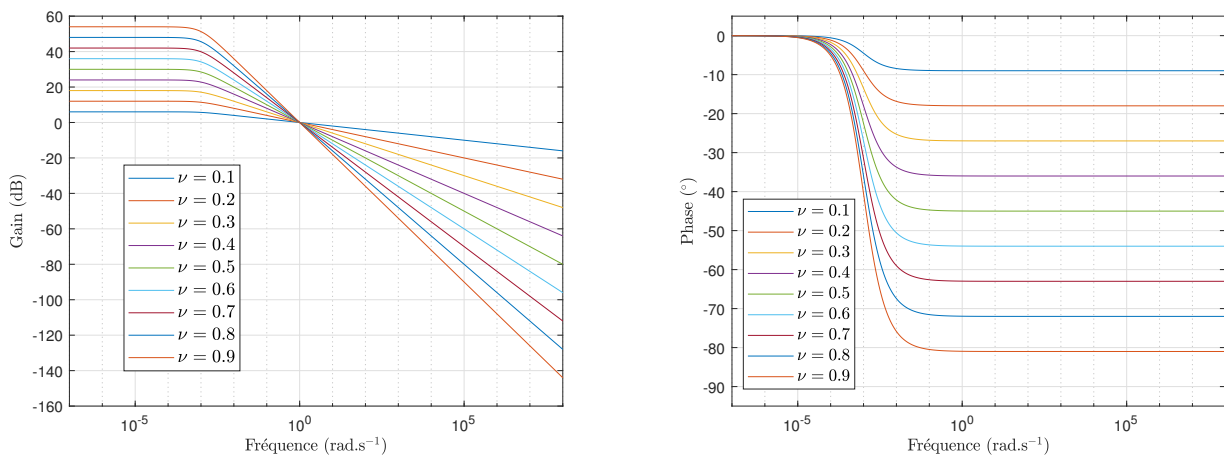


FIGURE 2.14: Diagrammes de gain (gauche) et de phase (droite) de $I(s)$ pour différentes valeurs de ν et $T_f = 10000$

En utilisant l'expression (2.117), la relation (2.116) devient

$$s\widehat{x}(s) = A_0\widehat{x}(s) + A_1\widehat{x}(s)I(s) + B\widehat{u}(s) \quad (2.121)$$

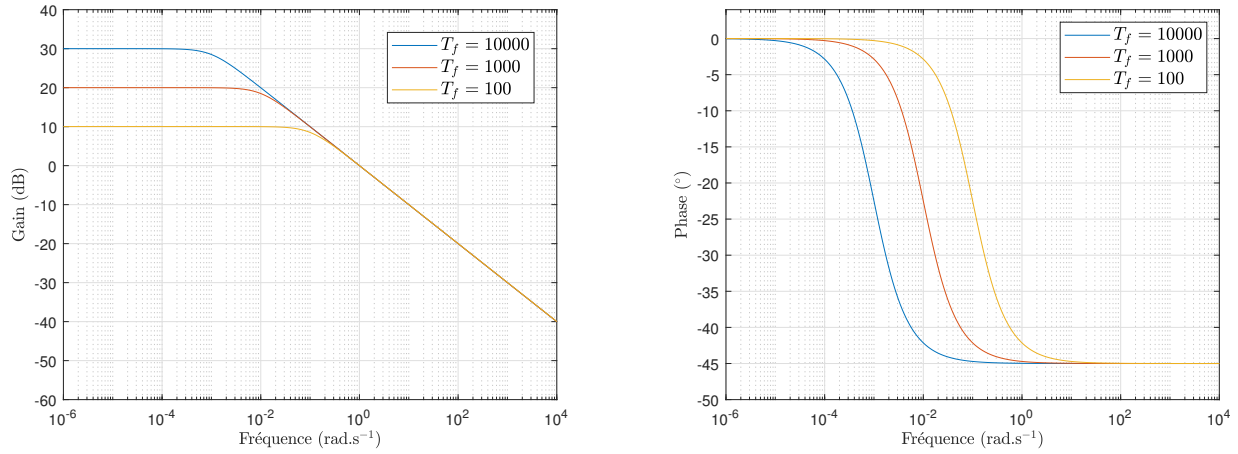


FIGURE 2.15: Diagrammes de gain (gauche) et de phase (droite) de $I(s)$ pour différentes valeurs de T_f et $\nu = 0.5$

La fonction de transfert est alors donnée par :

$$\frac{\hat{x}(s)}{\hat{u}(s)} = \frac{B}{s - A_1 I(s) - A_0} \quad (2.122)$$

et peut être réécrite comme suit :

$$\frac{\hat{x}(s)}{\hat{u}(s)} = \frac{-\frac{B}{A_1}}{\frac{-s}{A_1} + I(s) + \frac{A_0}{A_1}} = \frac{\beta}{\alpha_1 s + I(s) + \alpha_0} = H(s). \quad (2.123)$$

Les valeurs β , α_0 et α_1 peuvent être utilisées pour contrôler le gain de la fonction de transfert et la bande de fréquence sur laquelle il y a un comportement à mémoire longue. La figure 2.16 décrit comment les paramètres agissent sur le diagramme de gain asymptotique du dénominateur de $H(s)$ et donc comment ils permettent d'avoir le comportement à mémoire longue de type puissance voulu.

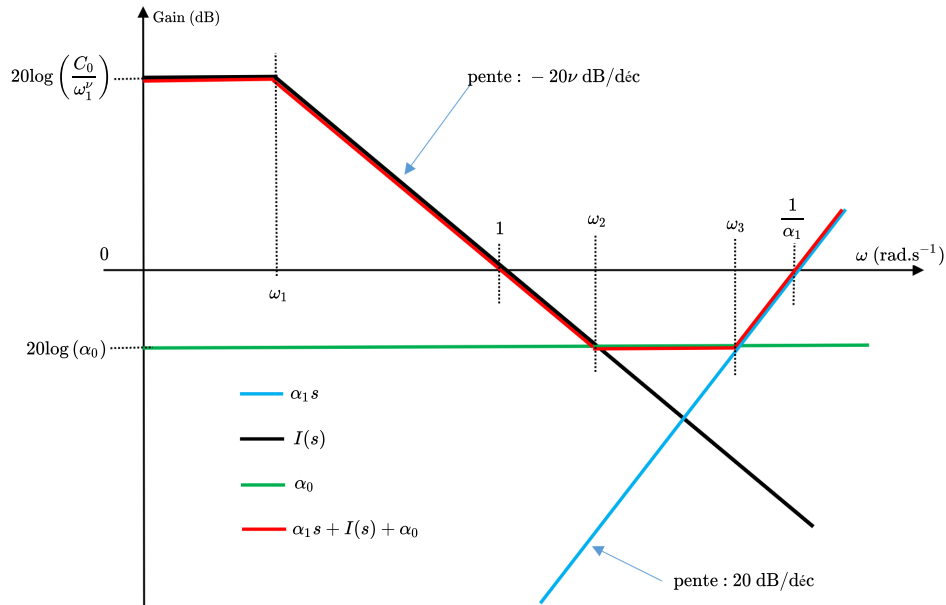


FIGURE 2.16: Impact des paramètres ν , α_0 et α_1 sur le gain du dénominateur de $H(s)$

La figure 2.17 montre la réponse fréquentielle de $H(s)/s$ pour différentes valeurs de ν et avec $\omega_1 = 0.001$ rad/s, $\omega_2 = 10^4$ rad/s, $\omega_3 = 10^6$ rad/s et $T_f = 10^4$ s. Elle met en évidence la capacité

de la classe de modèle considérée à produire des comportement de type puissance et la manière qu'ont les paramètres de contrôler la bande de fréquence sur laquelle ce comportement a lieu.

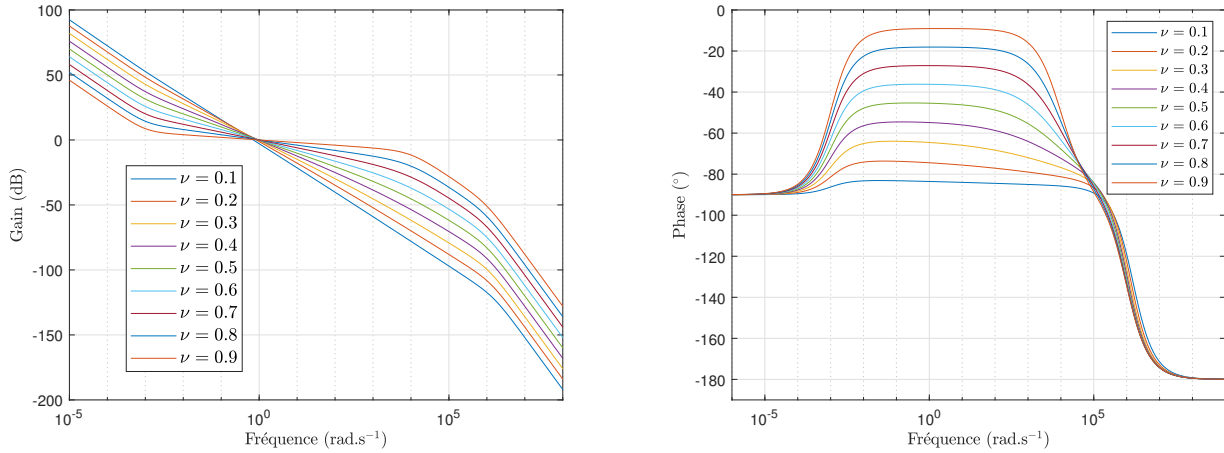


FIGURE 2.17: Diagramme de gain (gauche) et de phase (droite) de $H(s)/s$ pour plusieurs valeurs de ν

Le noyau proposé précédemment possède une singularité en $t = 0$. Afin d'outrepasser ce problème, plusieurs noyaux ont été proposés dans [99, 5, 23]. Le noyau proposé ici est le suivant :

$$\eta(t) = C_0 \left(\frac{\omega_l^\nu}{\Gamma(\nu)} t^{\nu-1} e^{-\omega_l t} - \frac{\omega_l^\nu}{\Gamma(\nu)} t^{\nu-1} e^{-\omega_m t} + \omega_l^\nu \omega_m^{\nu-1} e^{-\omega_m t} \right) \quad (2.124)$$

avec

$$C_0 = \left| \left(\frac{1}{\left(\frac{j}{\omega_l} + 1\right)^\nu} - \left(\frac{\omega_l}{\omega_m}\right)^\nu \frac{1}{\left(\frac{j}{\omega_l} + 1\right)^\nu} + \left(\frac{\omega_l}{\omega_m}\right)^\nu \frac{1}{\frac{j}{\omega_l} + 1} \right)^{-1} \right|. \quad (2.125)$$

On a l'équivalence en 0 suivante :

$$\eta(t) \sim_{t \rightarrow 0} C_0 \left(\frac{\omega_l^\nu}{\Omega(\nu)} t^{\nu-1} (-\omega_l t + \omega_m t) + \omega_l^\nu \omega_m^{1-\nu} \right) \quad (2.126)$$

et donc

$$\lim_{t \rightarrow 0} \eta(t) = C_0 \omega_l^\nu \omega_m^{1-\nu}. \quad (2.127)$$

Ce noyau n'est donc pas singulier en 0.

Avec ce nouveau noyau, l'intégrale (2.117) donne

$$I(s) = K_1 ({}_1F_1(\nu, 1 + \nu, (s + \omega_l)T_f) - {}_1F_1(\nu, 1 + \nu, (s + \omega_m)T_f)) + K_2 \left(\frac{1 - e^{-(s + \omega_m)T_f}}{s + \omega_m} \right), \quad (2.128)$$

avec

$$K_1 = \frac{C_0 \omega_l^\nu T_f^\nu}{\Gamma(1 + \nu)} \quad K_2 = C_0 \omega_l^\nu \omega_m^{1-\nu}. \quad (2.129)$$

La figure 2.18 montre le diagramme de gain et de phase de l'intégrale $I(s)$ pour plusieurs valeurs de ν , avec $\omega_l = 10^{-2}$ rad/s et $\omega_m = 10^4$ rad/s. Comme pour le noyau donné par la relation (2.113), les paramètres A_0 , A_1 et B (et donc β , α_0 et α_1) du modèle (2.123) peuvent être utilisés pour contrôler la bande de fréquence sur laquelle le comportement de type puissance a lieu. La figure 2.19 montre l'impact du paramètre α_0 sur la réponse fréquentielle de $H(s)$.

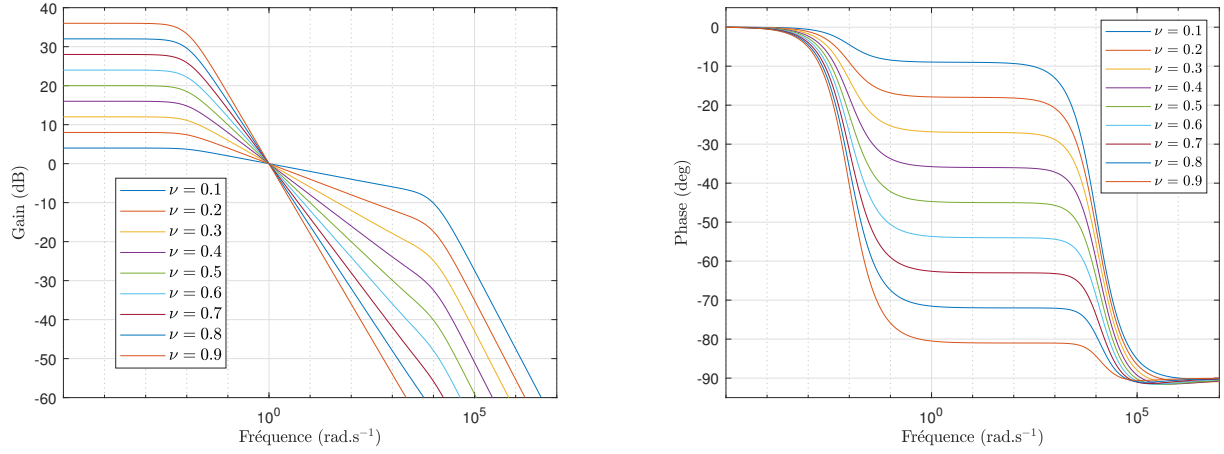


FIGURE 2.18: Diagramme de gain (gauche) et de phase (droite) de $H(s)/s$ avec le noyau non singulier de l'équation 2.124 pour plusieurs valeurs de ν

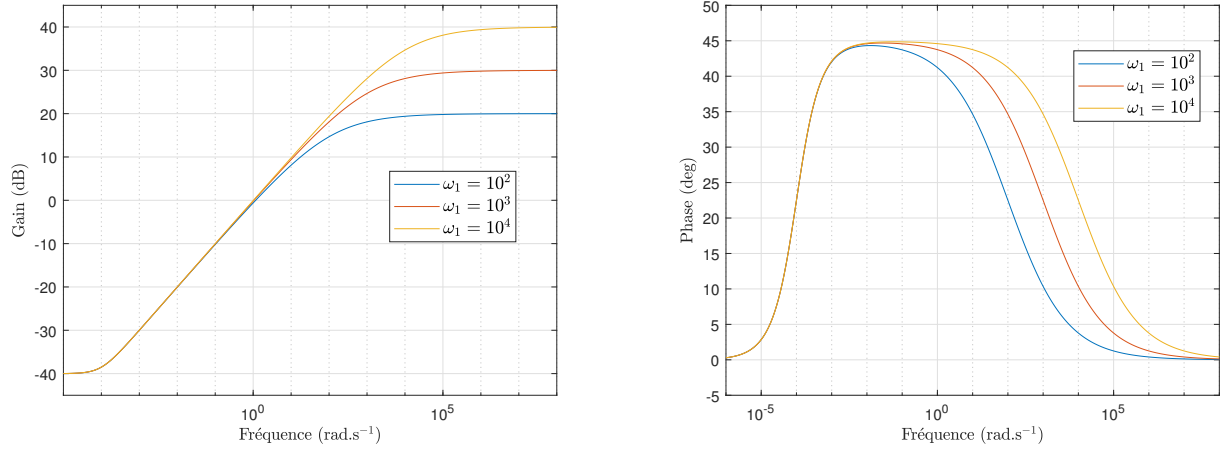


FIGURE 2.19: Diagramme de gain (gauche) et de phase (droite) de $H(s)$ avec le noyau non singulier de l'équation 2.124 pour plusieurs valeurs de $\alpha_0 = 1/\omega_1'$ et $\nu = 0.5$

2.5.2 Application à la modélisation de données réelles

Dans cette section, l'exemple de la charge d'une cellule lithium-ion de la section 2.4.3 est réutilisé. La partie diffusion est donc ici modélisée par le modèle à retards distribués suivant :

$$\begin{cases} \frac{dx(t)}{dt} = A_1 \int_0^{T_0} \eta(\tau) x(t - \tau) d\tau + BI(t) \\ U(t) = A_1 \int_0^t x(\tau) d\tau \end{cases}, \quad (2.130)$$

où le noyau est celui défini dans l'équation (2.124), avec $\omega_l = 10/T_f$ et ω_m est choisi comme étant 10 fois plus grand que la fréquence d'échantillonnage du courant et de la tension.

L'optimisation donne les paramètres suivants :

$$A_1 = 989.6, \quad B = 45.92, \quad T_f = 1410, \quad (2.131)$$

pour une erreur quadratique de

$$\varepsilon = 4.8673 \times 10^{-1}, \quad (2.132)$$

légèrement plus élevée qu'avec le modèle non entier (2.100) mais avec un nombre de paramètres bien plus faible. La figure 2.20 montre une comparaison de la tension de la cellule avec le modèle (2.130) et met en évidence la capacité de cette classe de modèle à capturer le comportement de type puissance de ce signal.

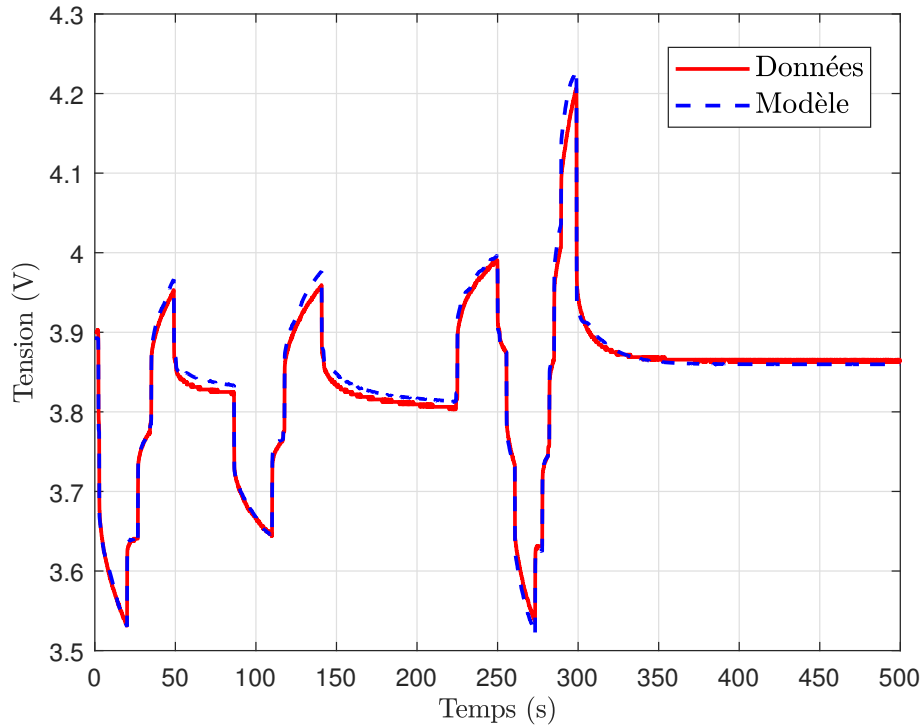


FIGURE 2.20: Tension de la cellule lithium-ion comparée à la réponse du modèle à retards distribués (2.130) avec le noyau (2.126)

2.6 Équations de diffusion à coefficients spatialement variables

On considère l'équation de la chaleur suivante avec des paramètres spatialement variables :

$$\frac{\partial T(z, t)}{\partial t} = \gamma(z) \frac{\partial}{\partial z} \left(\beta(z) \frac{\partial T(z, t)}{\partial z} \right), \quad (2.133)$$

avec $z \in \mathbb{R}^+$. $T(z, 0) = f(z)$ et $T(0, t) = g(t)$ sont respectivement la condition initiale et la condition au bord associés à la relation (2.133). $T(z, t)$ représente un potentiel (température, pression, tension,...) mesuré à la distance z de l'origine spatiale. Les fonctions $\beta(z)$ et $\gamma(z)$ sont deux fonctions continues homogènes, respectivement, à l'inverse d'une résistance linéique et l'inverse d'une capacité linéique. Considérons la relation suivante

$$\varphi(z, t) = \beta(z) \frac{\partial T(z, t)}{\partial z}, \quad (2.134)$$

qui peut être vue comme un flux de particule (flux de chaleur, flux de gaz, courant,...).

L'implémentation des relation (2.133) et (2.134) nécessite un schéma numérique qui peut être obtenu à partir d'une discrétisation spatiale. Ainsi, une discrétisation de l'équation (2.134) avec un pas Δz conduit à :

$$\varphi(z, t) = \beta(z) \frac{T(z + \Delta z, t) - T(z, t)}{\Delta z}, \quad (2.135)$$

et donc

$$T(z, t) - T(z + \Delta z, t) = -\frac{\Delta z}{\beta(z)} \varphi(z, t). \quad (2.136)$$

En utilisant la relation (2.134), la relation (2.133) peut-être réécrite :

$$\frac{\partial T(z, t)}{\partial t} = \gamma(z) \frac{\partial \varphi(z, t)}{\partial z}. \quad (2.137)$$

Une discrétisation spatiale de l'équation (2.137) avec un pas de discrétisation Δz conduit à :

$$\frac{\partial T(z, t)}{\partial t} = \gamma(z) \frac{\varphi(z + \Delta z, t) - \varphi(z, t)}{\Delta z} = \frac{\gamma(z)}{\Delta z} (\varphi(z + \Delta z, t) - \varphi(z, t)). \quad (2.138)$$

Pour $z = k\Delta z$, et en introduisant la notation

$$R_k = -\frac{\Delta z}{\beta(k\Delta z)} = R(k\Delta z) \cdot \Delta z \quad \text{et} \quad C_k = -\frac{\Delta z}{\gamma(k\Delta z)} = C(k\Delta z) \cdot \Delta z, \quad (2.139)$$

une discrétisation de l'équation (2.133) conduit au réseau RC de type Caueur de la figure 2.21.

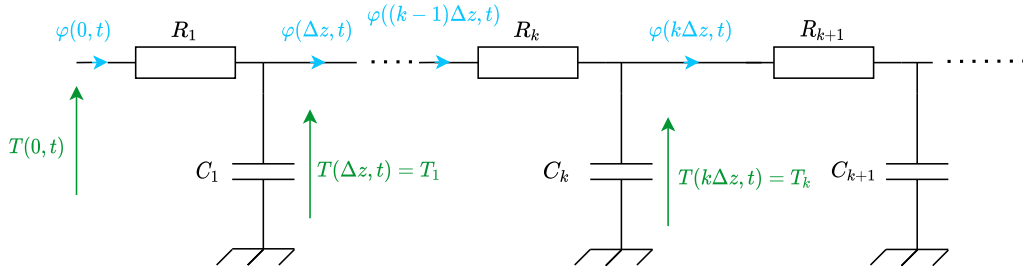


FIGURE 2.21: Réseau RC de type Caueur résultant de la discrétisation de la relation (2.133)

On suppose à présent que les résistances et capacités $R_k = R(k\Delta z) \Delta z$ et $C_k = C(k\Delta z) \Delta z$ du réseau respectent les relations

$$\frac{R_{k+1}}{R_k} = \left(\frac{k+1}{k}\right)^{\lambda_R} \quad \text{et} \quad \frac{C_{k+1}}{C_k} = \left(\frac{k+1}{k}\right)^{-\lambda_C}. \quad (2.140)$$

De tels rapports résultent d'un découpage infinitésimal d'un milieu continu qui conduit pour les capacités et résistances du réseau de la figure 2.21 aux relations suivantes

$$R_k = R(k\Delta z) \Delta z = R_0 \cdot (k\Delta z)^{\lambda_R} \Delta z \quad \text{et} \quad C_k = C(k\Delta z) \Delta z = C_0 \cdot (k\Delta z)^{-\lambda_C} \Delta z, \quad (2.141)$$

c'est à dire que les caractéristiques linéiques du milieu sont définies par :

$$R(z) = R_0 z^{\lambda_R} \quad \text{et} \quad C(z) = C_0 z^{-\lambda_C} \quad z \in [1, \infty[, \quad (2.142)$$

où R_0 et C_0 sont des réels.

Donc pour l'équation (2.133), cela conduit aux coefficients spatialement variables suivants :

$$\beta(z) = -\frac{1}{R_0 z^{\lambda_R}} \quad \text{et} \quad \gamma(z) = -\frac{1}{C_0 z^{-\lambda_C}} \quad z \in [1, \infty[. \quad (2.143)$$

Le changement de variable $x = \log(z)$, $x \in [0, \infty[$, est maintenant considéré. La relation (2.142) devient alors

$$R(x) = R_0 e^{x\lambda_R} \quad \text{et} \quad C(x) = C_0 e^{-x\lambda_C} \quad x \in [0, \infty[, \quad (2.144)$$

et les rapports entre deux résistances ou capacités sont donc définis par :

$$\frac{R_{k+1}}{R_k} = \frac{R((k+1) \Delta x)}{R(k \Delta x)} = e^{\lambda_R \Delta x} \quad \text{et} \quad \frac{C_{k+1}}{C_k} = \frac{C((k+1) \Delta x)}{C(k \Delta x)} = e^{-\lambda_C \Delta x}. \quad (2.145)$$

Pour cette distribution géométrique, un résultat analytique peut être obtenu pour montrer que le réseau de type Cauer génère un comportement de type puissance. En considérant le réseau de la figure 2.21, les relations suivantes s'appliquent

$$\frac{1}{sC_k} (\varphi_{k-1}(s) - \varphi_k(s)) = T_k(s) \quad (2.146)$$

et

$$T_{k+1}(s) - T_k(s) = -R_k T_k(s). \quad (2.147)$$

Grâce aux relations (2.146) et (2.147), on peut écrire

$$\frac{T_k(s)}{T_{k-1}(s)} = \frac{\frac{1}{sC_k}}{1 + \frac{1}{sC_k} \frac{\varphi_k(s)}{T_k(s)}} \quad (2.148)$$

et

$$\frac{\varphi_k(s)}{T_k(s)} = \frac{\frac{1}{R_k}}{1 + \frac{1}{R_k} \frac{T_{k+1}(s)}{\varphi_k(s)}}. \quad (2.149)$$

En combinant les relations (2.148) et (2.149), on peut montrer que l'admittance d'entrée du réseau de la figure 2.21 est définie par la fraction continue :

$$H(s) = \frac{\varphi_0(s)}{T_0(s)} = \frac{\frac{1}{R_1}}{1 + \frac{\frac{1}{sC_1 R_1}}{1 + \frac{\frac{1}{sC_1 R_2}}{1 + \frac{\frac{1}{sC_2 R_2}}{1 + \dots}}}}. \quad (2.150)$$

Supposons que les résistances et les capacités sont géométriquement distribuées et liées par les rapports :

$$\frac{R_{k+1}}{R_k} = \sigma \quad \text{et} \quad \frac{C_{k+1}}{C_k} = \rho, \quad (2.151)$$

et si $Z(s) = \frac{1}{sC_1 R_1}$, alors la relation (2.150) devient

$$H(s) = \frac{\varphi_0(s)}{T_0(s)} = \frac{\frac{1}{R_1}}{1 + \frac{\frac{Z(s)}{1 + \frac{Z(s)/\sigma}{1 + \frac{Z(s)/\sigma\rho}{1 + \frac{Z(s)/\sigma^2\rho^2}{1 + \frac{Z(s)/\sigma^3\rho^3}{1 + \dots}}}}}{1 + \frac{Z(s)/\sigma^N \rho^N}{1 + Z(s)/\sigma^{N+1} \rho^N}}}. \quad (2.152)$$

En introduisant la fonction

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = \frac{Z(s)}{1 + \frac{\frac{Z(s)/\sigma}{1 + \frac{Z(s)/\sigma\rho}{1 + \frac{Z(s)/\sigma^2\rho^2}{1 + \frac{Z(s)/\sigma^3\rho^3}{1 + \dots}}}}}{1 + \frac{Z(s)/\sigma^N \rho^N}{1 + Z(s)/\sigma^{N+1} \rho^N}}, \quad (2.153)$$

la relation (2.153) devient

$$H(s) = \frac{\varphi_0(s)}{T_0(s)} = \frac{\frac{1}{R_1}}{1 + g(Z(s), \sigma, \rho)}. \quad (2.154)$$

Si N tend vers l'infini, on a la propriété suivante pour la fonction g de l'équation (2.153).

Propriété 2. La fonction $g(Z(s), \sigma, \rho)$ vérifie la relation suivante

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = \frac{Z(s)}{1 + g(Z(s), \rho, \sigma)}. \quad (2.155)$$

Grâce à la propriété 2, la fonction $g(Z(s), \sigma, \rho)$ peut être écrite sous la forme du fonction rationnelle, comme l'indique le théorème qui suit.

Théorème 2. Si $N \rightarrow \infty$,

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K(\sigma, \rho) Z(s)^\nu \left[\frac{1 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\sigma, \rho) \left(\frac{Z(s)}{\sigma}\right)^{-\nu-k+1} + C_{2k}(\sigma, \rho) \left(\frac{Z(s)}{\sigma}\right)^{-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\rho, \sigma) (Z(s))^{-\nu-k+1} + C_{2k}(\rho, \sigma) (Z(s))^{-k}} \right] \quad (2.156)$$

En utilisant le théorème 2, démontré dans l'annexe C, pour $|Z(s)| \gg 1$, (quand $\sigma > 1$), l'admittance $H(s)$ vérifie la relation

$$H(s) \approx \frac{\frac{1}{R_1}}{K(\sigma, \rho) Z(s)^\nu}. \quad (2.157)$$

Cette relation démontre que l'impédance d'entrée du réseau de la figure 2.21 a un comportement de type puissance et donc que l'équation de diffusion à coefficient variable (2.133) a aussi ce type de comportement. A noter que ce comportement est conservé si le domaine spatial n'est plus infini, ce qui limite le nombre de terme dans le réseau de la figure 2.21 et la gamme de fréquence sur laquelle le comportement de type puissance apparaît.

L'efficacité de cette classe d'équation pour la modélisation de comportement de type puissance sera démontrée au chapitre 4 dans le cas de la modélisation de données de stockage d'hydrogène dans un réservoir à base d'hydrure métallique

2.7 Modèles non linéaires

Certains systèmes présentent des non linéarités, c'est-à-dire qu'ils ne vérifient pas le principe de superposition : la somme de deux entrées quelconques ne conduit pas à la somme des deux sorties correspondantes, ou un multiple d'une entrée quelconque ne produit pas le multiple de la sortie correspondante. Pour une représentation d'état de la forme (2.1), cela correspond à considérer des fonctions f et/ou h non linéaires par rapport à u et/ou x (l'entrée et l'état). C'est le cas de la plupart des systèmes physiques mais leur comportement autour d'un point de fonctionnement donné est souvent correctement approximé par un modèle linéaire. Or un certain nombre de systèmes de type puissance présentent un comportement non linéaire. La partie 2.7.1 reprend un cas simple introduit au chapitre 1 : la croissance d'un tas de sable.

Il existe une infinité de possibilités de modèles non linéaires et dans le cas général, leur étude est souvent assez complexe. La littérature possède des résultats sur des classes très spécifiques de modèles non linéaires. Une des classes très étudiée est celle des modèles affines en l'entrée, qui présentent une linéarité vis-à-vis de l'entrée. C'est précisément cette classe de modèle qui va être utilisée pour capturer l'évolution de la hauteur d'un tas de sable et plus généralement le comportement de systèmes à mémoire longue de type puissance.

2.7.1 Exemple du tas de sable

Le modèle du tas de sable a été introduit dans la section 1.3.4 comme un exemple de criticalité auto-organisée. Il est repris ici plus en détail.

On considère la croissance d'un tas de sable par une chute de grains suivant un flux $Q(t)$. On s'intéresse à la hauteur $h(t)$ du tas de sable au cours du temps. On suppose que le rayon $r(t)$ de la base du tas de sable évolue également au cours du temps.

On pose $\alpha(t)$ l'angle formé par le tas de sable avec l'horizontale, soit :

$$\tan(\alpha(t)) = \frac{h(t)}{r(t)}. \quad (2.158)$$

La figure 2.22 illustre la formation d'un tas de sable et fait apparaître les notations introduites.



FIGURE 2.22: *Tas de sable en cours de formation*

On note $V_c(t)$ le volume du tas de sable au cours du temps, soit

$$V_c(t) = \frac{1}{3}\pi r^2 h = \frac{\pi h^3}{3 \tan(\alpha)^2}. \quad (2.159)$$

Le débit $Q(t)$ crée une variation de ce volume. On a donc

$$\frac{dV_c}{dt} = Q(t). \quad (2.160)$$

En supposant α constant, l'équation (2.160) devient

$$\frac{dV_c}{dt} = \frac{\pi h(t)^2}{\tan(\alpha)^2} \frac{dh(t)}{dt}. \quad (2.161)$$

En combinant les relations (2.160) et (2.161), la variation de la hauteur du tas de sable est alors décrite par

$$\frac{dh(t)}{dt} = \frac{\tan(\alpha)^2}{\pi h(t)^2} Q(t). \quad (2.162)$$

Pour un flux $Q(t)$ constant on a ainsi

$$\frac{dh(t)}{dt} = \frac{a_0}{h(t)^2} \mathcal{H}(t), \quad (2.163)$$

où a_0 est une constante et $\mathcal{H}(t)$ est la fonction de Heaviside.

Sur la figure 2.23, la sortie du modèle est comparée avec les mesures présentées au chapitre 1. Le paramètre a_0 a été obtenu par minimisation de l'erreur quadratique entre les mesures et le modèle (2.162), ce qui conduit à $a_0 = 10.3140$.

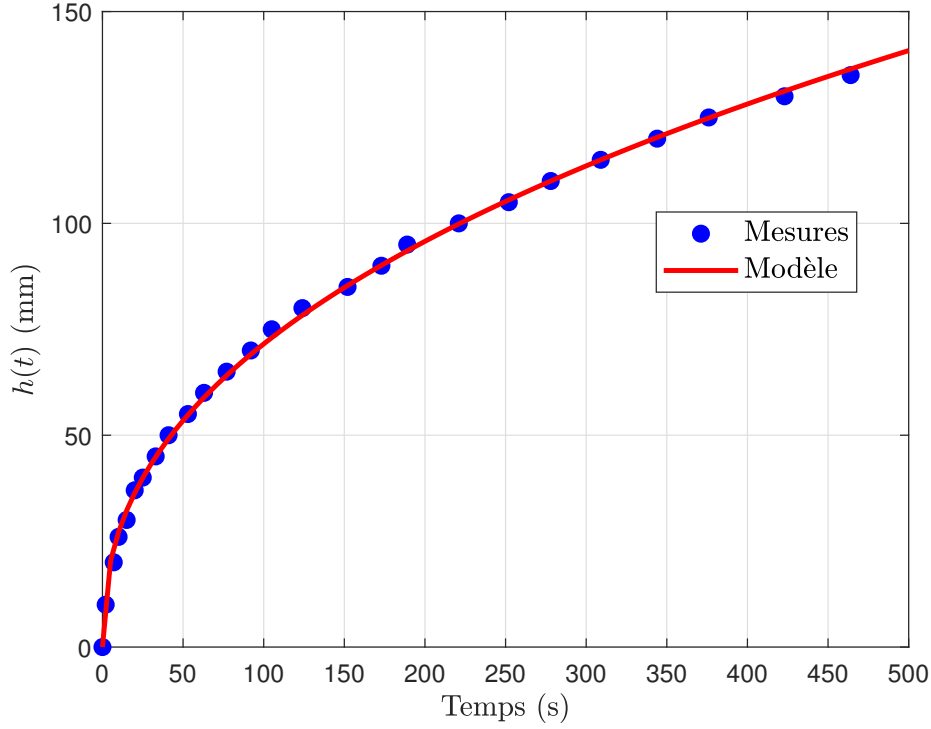


FIGURE 2.23: Comparaison entre les mesures et la réponse du modèle (2.162)

La relation (2.163) qui précède est un cas particulier de modèle non-linéaire présentant une linéarité en l'entrée. Ces modèles ont été assez largement étudiés dans la littérature [59, 57, 111] et s'écrivent comme suit

$$\begin{cases} \dot{x} = f(x) + \sum_{i=1}^n g_i(x)u_i \\ y = h(x) \end{cases}, \quad (2.164)$$

avec f , g_i et h des fonctions continues. Ce type de système est qualifié de système affine en l'entrée (en anglais, *control-affine system* ou *affine-in-control system*). On parle de système affine en l'entrée, sans déviation (en anglais, *driftless*) lorsque f est la fonction nulle. Le modèle (2.164) devient alors

$$\begin{cases} \dot{x} = \sum_{i=1}^n g_i(x)u_i \\ y = h(x) \end{cases}. \quad (2.165)$$

2.7.2 Généralisation du modèle (2.163)

L'équation différentielle (2.163) obtenue précédemment pour décrire la hauteur d'un tas de sable est généralisée et étudiée.

Soit $\nu \in \mathbb{R}^*$, $A \in \mathbb{R}$, $C \in \mathbb{R}$. On considère l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dx(t)}{dt} = A(x(t) + C)^{1-\frac{1}{\nu}} \cdot u(t). \quad (2.166)$$

Pour $\nu = \frac{1}{3}$, $C = 0$ et $u(t) = \mathcal{H}(t)$ on retrouve l'équation (2.163) :

$$\frac{dx(t)}{dt} = Ax(t)^{-2} \cdot \mathcal{H}(t). \quad (2.167)$$

L'équation (2.166) est une équation différentielle séparable, dont la résolution s'obtient comme suit :

$$\begin{aligned} \frac{dx(t)}{dt} &= A(x(t) + C)^{1-\frac{1}{\nu}} \cdot u(t) \\ \Leftrightarrow \frac{dx(t)}{dt} (x(t) + C)^{-(\nu-1)/\nu} &= Au(t) \\ \Leftrightarrow \int \frac{dx(t)}{dt} (x(t) + C)^{-(\nu-1)/\nu} dt &= A \int u(t) dt. \end{aligned} \quad (2.168)$$

En évaluant les intégrales et on obtient

$$\nu (C + x(t))^{1/\nu} = A \int u(t) dt + K \quad (2.169)$$

Ainsi, la solution de l'équation (2.166) est donnée par

$$x(t) = \left(\frac{1}{\nu} \int Au(t) dt + K \right)^\nu - C. \quad (2.170)$$

Pour $u(t) = 1$, alors la relation (2.170) devient

$$x(t) = \left(\frac{A}{\nu} t + K \right)^\nu - C. \quad (2.171)$$

L'équation différentielle (2.166) produit donc un comportement à mémoire longue de type puissance d'ordre ν .

Pour $u(t) = 1$, $A = 1$, $C = 0$ et $K = 0$, l'équation (2.170) devient en effet :

$$x(t) = \frac{1}{\nu^\nu} t^\nu. \quad (2.172)$$

Cette dernière fonction est tracée pour plusieurs valeurs de ν sur les figures 2.24 à 2.26. On observe une évolution très rapide sur les temps courts et une progression plus lente sur les temps longs, comportement typique de la réponse impulsionnelle des systèmes à comportement de type puissance.

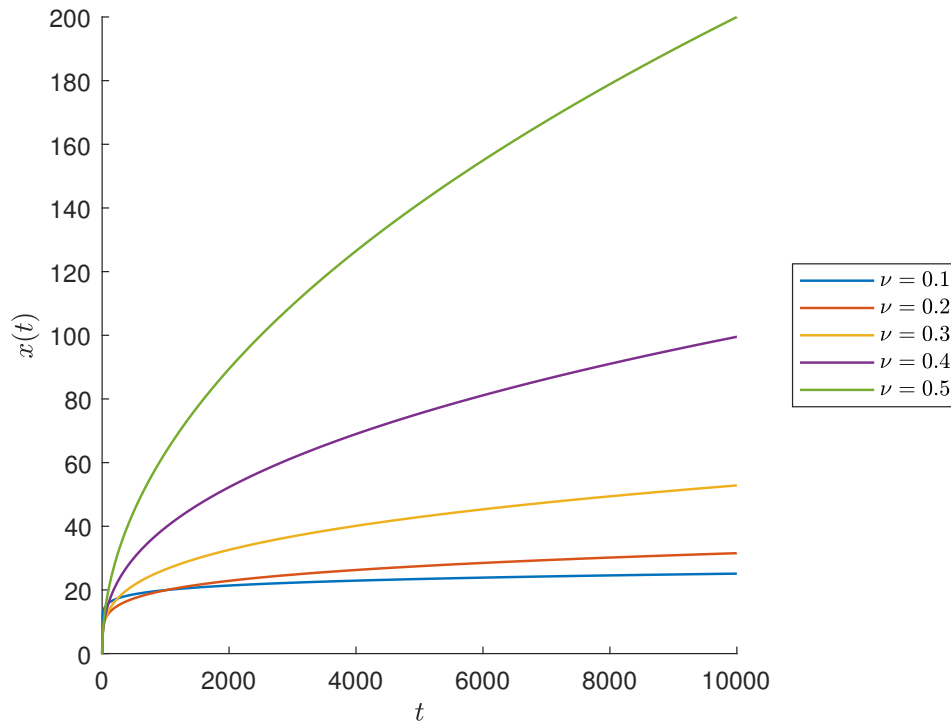


FIGURE 2.24: Tracé de la solution $x(t)$ de la relation (2.172) pour $\nu \in \{0.1, 0.2, \dots, 0.5\}$

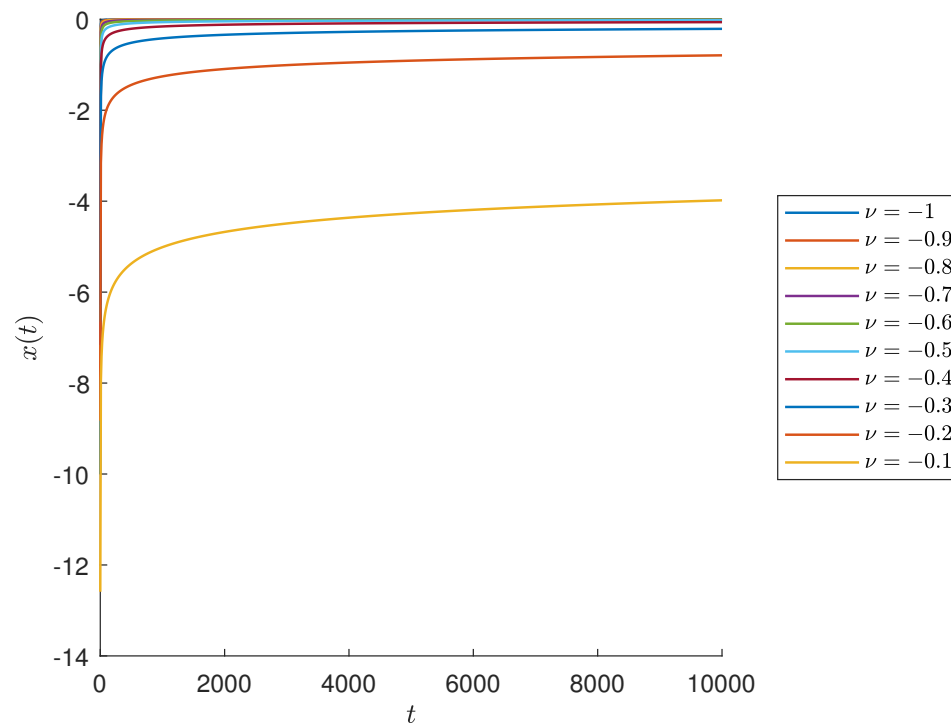


FIGURE 2.25: Tracé de la solution $x(t)$ de la relation (2.172) pour $\nu \in \{-1, -0.9, \dots, -0.1\}$

Sur la figure 2.26, on observe que $x(t)$ est similaire à la réponse impulsionnelle d'un intégrateur non entier.

La modèle décrit par la relation (2.166) sera utilisé pour modéliser des systèmes à comportement de type puissance dans le chapitre suivant et son efficacité sera discuté aux cotés d'autres

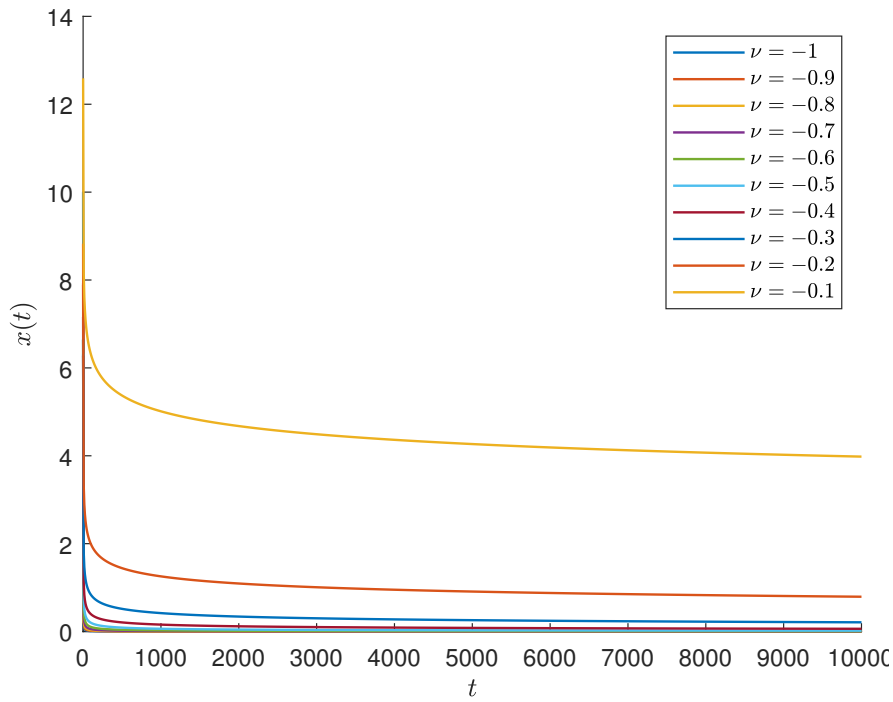


FIGURE 2.26: Solution $x(t)$ avec $A = -1$, $u(t) = 1$, $K = 0$ et $C = 0$ pour $\nu \in \{-1, -0.9, \dots, -0.1\}$

modèles.

2.8 Conclusion

Ce chapitre a permis de présenter un panel d'outils permettant de capturer les phénomènes ayant un comportement de type puissance. Dans un premier temps, l'outil usuel pour capturer ce type de comportement que sont les modèles non entiers a été présenté et des limitations ont été mises en évidence. De ce fait, plusieurs modèles alternatifs ont été proposés. Les deux premiers types de modèles proposés sont linéaires. Le premier, basé sur les équations intégrales de Volterra, est vu comme une généralisation des modèles non-entiers. Le comportement de ce type de modèle est étudié via différents noyaux. À partir d'une discrétisation du modèle il est possible de déterminer numériquement un noyau et cette méthode permet de modéliser des données expérimentales et de capturer des comportements de type puissance. Le second modèle proposé, dit modèle à retard distribué, est également basé sur des équations intégrales. Il est montré que pour certains noyaux et pour une certaine distribution des retards, il est possible de capturer un comportement de type puissance et cela est montré sur des données expérimentales. Un autre type de modèle proposé est basé sur une équation de diffusion à coefficients spatialement variables. Sous certaines conditions dans la définition des coefficients, il est prouvé que ces équations présentent des comportements de type puissance. Le dernier type de modèles est non linéaire. Ce type de modèle, dit affine en l'entrée est d'abord déduit de l'étude de la dynamique de formation d'un tas de sable puis généralisé. De ce phénomène, on montre que cette classe de modèle peut capturer des comportements de type puissance.

Dans les chapitres qui suivent, ces deux dernières classes de modèles seront étudiées plus en détail et notamment :

- les modèles non linéaires seront appliqués à la modélisation du phénomène d'adsorption ;
- les équations de diffusion à coefficients spatialement variables seront appliquées à la modélisation de l'absorption de l'hydrogène dans des systèmes de stockage à base d'hydrure

métallique.

Chapitre 3

Modélisation non linéaire des phénomènes d'adsorption et désorption

3.1	Introduction	70
3.2	Capteur à onde de Love	70
3.3	Adsorption Séquentielle Aléatoire (ASA)	74
3.3.1	Cas 2D	74
3.3.2	Cas fractal	80
3.4	Modélisation du dépôt de CO₂	87
3.4.1	Modèles cinétiques existants pour modéliser l'adsorption et limitations	88
3.4.2	Modèle affine en l'entrée	93
3.5	Conclusion	97

3.1 Introduction

Comme indiqué au chapitre 1 (partie 1.4.2), l'adsorption, phénomène selon lequel des particules se fixent sur une surface, présente une cinétique de type puissance sur les temps longs. De plus, comme pour l'exemple du tas de sable présenté au chapitre 2 (partie 2.7.1), sa dynamique est non linéaire : une augmentation de la quantité d'adsorbat modifie la cinétique d'adsorption mais pas le régime permanent. Pour cette raison, ce chapitre traite de la modélisation de ce phénomène via des modèles non linéaires. Dans un premier temps, ce phénomène est mis en évidence pour un capteur à ondes de Love, qui permet la détection d'espèces gazeuses. Un modèle non linéaire est proposé pour modéliser l'évolution de la fréquence de la propagation d'une onde dans ce capteur, évolution liée à la masse de particules adsorbées par ce capteur. Afin de mieux étudier le phénomène d'adsorption, le processus idéalisé introduit au chapitre 1 (partie 1.4.2), l'Adsorption Séquentielle Aléatoire (en anglais, *Random Sequential Adsorption*), est d'abord présenté et étudié en 2 dimensions ainsi que sur des surfaces fractales. Des données sont simulées puis modélisées à l'aide de modèles non linéaires et leur efficacité est comparée. La dernière section est dédiée à la modélisation d'un dépôt de CO_2 sur du cuivre hexacyanoferrate. Certains modèles de la littérature sont mis à l'épreuve pour modéliser ces données, puis une modélisation à l'aide d'un modèle non linéaire est proposée.

3.2 Capteur à onde de Love

Le principe de fonctionnement d'un capteur à ondes de Love, représenté sur la figure 3.1(a), est le suivant [80]. Un signal sinusoïdal $V_e(t)$ est appliqué à un transducteur interdigité (IDT) émetteur. Ce dernier étant appliqué sur un matériau piézoélectrique crée une onde élastique résultant des compressions et expansions du matériau. Cette onde se propage alors en surface le long de la couche guidante et sa propagation dépend des caractéristiques des matériaux traversés. L'onde altérée est enfin transformée en tension $V_s(t)$ par le procédé inverse au niveau de l'IDT récepteur. Entre l'émetteur et le récepteur est déposée une couche sensible. L'espèce chimique que l'on souhaite détecter (espèce cible) réagit avec cette couche induisant une perturbation de ses propriétés et notamment de sa masse. Cet effet de masse vient modifier la propagation de l'onde permettant de déterminer la concentration de l'espèce cible. La fréquence du signal $V_e(t)$ est choisie pour amener le dispositif sur une résonance en l'absence d'éléments cibles. La présence d'éléments cibles va créer via l'effet de masse une variation de cette fréquence de résonance.

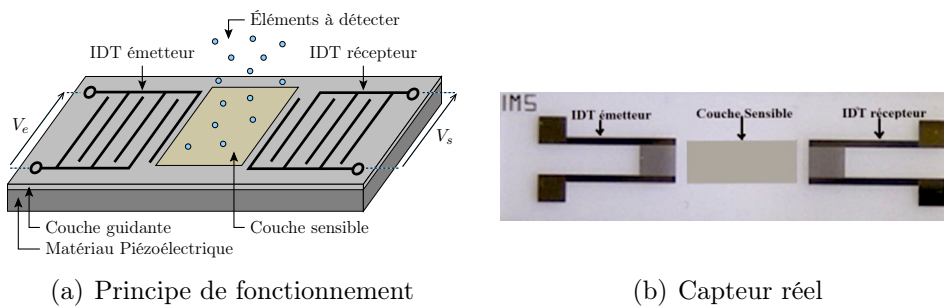


FIGURE 3.1: Capteur à ondes de Love

Des capteurs fonctionnant sur ce principe ont été réalisés à l'IMS (figure 3.1(b)) avec des couches sensibles à l'humidité ou au toluène. Des mesures expérimentales réalisées par l'équipe MDA (Microsystème de Détection à ondes Acoustiques alternatives) sont tracées sur la figure 3.2 dans le cas du capteur d'humidité [80]. Elles représentent l'écart de la fréquence mesurée en réponse à une augmentation du taux d'humidité de 1 ppm à $t = 0$ seconde.

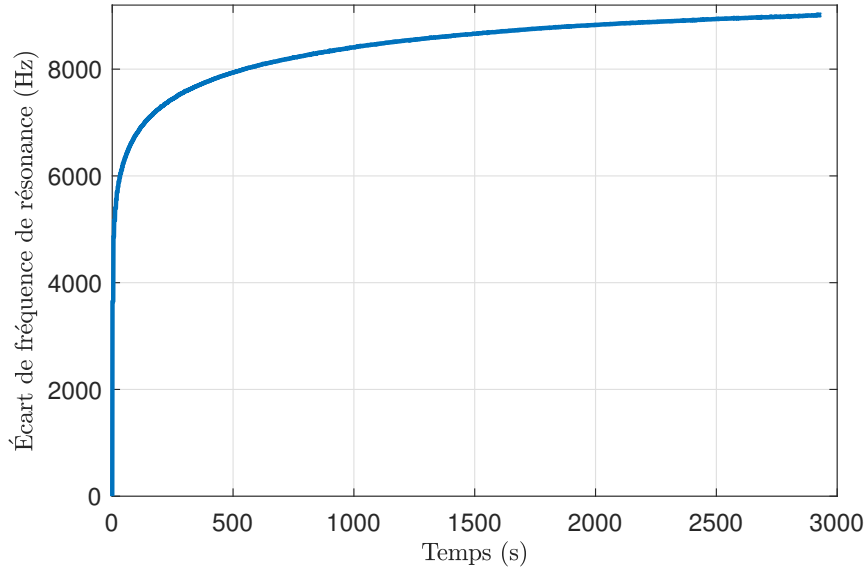


FIGURE 3.2: Écart de fréquence de résonance du signal V_e par rapport à la fréquence de résonance sans élément cible (pour une masse initiale M_0)

Pour simplifier son analyse, le fonctionnement du capteur à ondes de Love est approché par le système à armature mobile de la figure 3.3. Comme introduit dans la partie 1.4.2, l'adsorption peut faire apparaître des motifs fractaux ainsi que des dynamiques de type puissance. Ainsi, considérons que la masse de l'électrode, résultant de l'adsorption des particules, est définie par :

$$M(t) = M_0 + mt^\nu, \quad (3.1)$$

où M_0 désigne la masse de l'armature mobile en l'absence d'espèce adsorbée, m et ν sont des réels positifs.

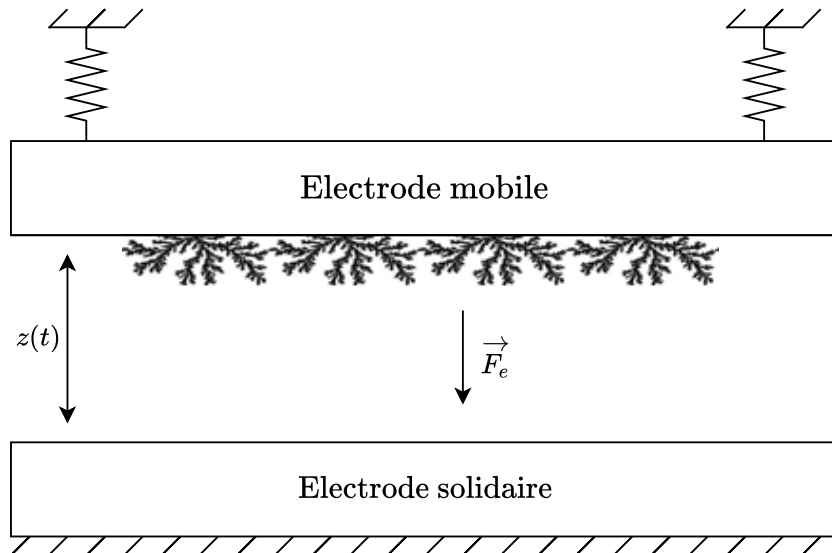


FIGURE 3.3: Schéma idéalisé du capteur

L'application d'une différence de potentiel $V(t)$ entre les deux armatures fait apparaître une force électrostatique de la forme :

$$F_e(t) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{1}{2} C(z) V^2(t) \right), \quad (3.2)$$

où C représente la capacité du condensateur et z est la distance entre les deux armatures.

Le mouvement de l'électrode mobile est régi par :

$$\frac{d}{dt} (M(t)\dot{z}(t)) + \mu\dot{z}(t) + kz(t) = F_e(t) \quad (3.3)$$

$$\Leftrightarrow (M_0 + mt^\nu) \ddot{z}(t) + (\mu + m\nu t^{\nu-1}) \dot{z}(t) + kz(t) = F_e(t), \quad (3.4)$$

où μ est le coefficient de frottement et k est la constante de raideur. Sous l'hypothèse d'une lente variation de la masse par rapport à la fréquence de résonance du système, la relation (3.4) peut-être réécrite de la façon suivante :

$$\ddot{z}(t) + 2\xi\omega_n\dot{z}(t) + \omega_n^2 z(t) = \frac{\omega_n^2}{k} F_e(t), \quad (3.5)$$

où ξ est le taux d'amortissement et ω_n est la pulsation propre non amortie. L'équation (3.5) correspond à un modèle du second ordre dont la pulsation propre non amortie est donnée par :

$$\omega_n = \sqrt{\frac{k}{M_0 + mt^\nu}}, \quad (3.6)$$

et la pulsation de résonance est donc donnée par

$$\omega_r = \omega_n \sqrt{1 - 2\xi^2}. \quad (3.7)$$

Sachant que $\frac{2\xi}{\omega_n} = \frac{\mu + m\nu t^{\nu-1}}{k}$, on a

$$\xi = \frac{\omega_n}{2k} (\mu + m\nu t^{\nu-1}). \quad (3.8)$$

Ainsi, l'évolution de la fréquence de résonance des pseudo-oscillations est donnée par :

$$f_r(t) = \frac{\omega_r}{2\pi} = \frac{1}{4\pi} \sqrt{\frac{k}{M_0 + mt^\nu}} \sqrt{\frac{-2(\mu + m\nu t^{\nu-1})^2}{k(M_0 + mt^\nu)} + 4}. \quad (3.9)$$

L'écart entre la fréquence de résonance pour une masse initiale M_0 et la fréquence de résonance mesurée au cours du temps est alors donné par

$$E_f(t) = \frac{\omega_{r_0}}{2\pi} - \frac{\omega_r}{2\pi} \quad (3.10)$$

$$= \frac{1}{4\pi} \left(\sqrt{\frac{k}{M_0}} \sqrt{-\frac{2\mu^2}{kM_0} + 4} - \sqrt{\frac{k}{M_0 + mt^\nu}} \sqrt{\frac{-2(\mu + m\nu t^{\nu-1})^2}{k(M_0 + mt^\nu)} + 4} \right), \quad (3.11)$$

où ω_{r_0} désigne la pulsation propre à $t = 0$. On a donc le comportement asymptotique suivant pour $E_f(t)$:

$$E_{f_\infty} - E_f(t) \sim \text{cste} \times t^{-\nu/2}, \quad (3.12)$$

où $E_{f_\infty} = \lim_{t \rightarrow \infty} E_f(t)$. L'équation (3.11) a donc un comportement proche d'une trajectoire du modèle (2.166) étudié dans la partie 2.7.2. La relation (3.11) est utilisée afin de modéliser l'écart de fréquence de résonance de la figure 3.2 (issue du capteur réel). Une optimisation sur les paramètres m , ν , k , M_0 et μ est effectuée et les valeurs du tableau 3.1 sont obtenues. La réponse indicielle de ce modèle est tracée sur la figure 3.4 et s'avère très proche des données réelles.

Ce premier phénomène illustre la capacité d'un modèle non linéaire à capter la dynamique du processus sous-jacent d'adsorption. Considérons à présent le modèle non linéaire affine en la

m	ν	k	M_0	μ
4.7789×10^{-6}	0.3500	3.5972×10^4	6.0073×10^{-6}	2.6851×10^{-8}

TABLE 3.1: Paramètres du modèle (3.11) identifiés à partir des données de la figure 3.2

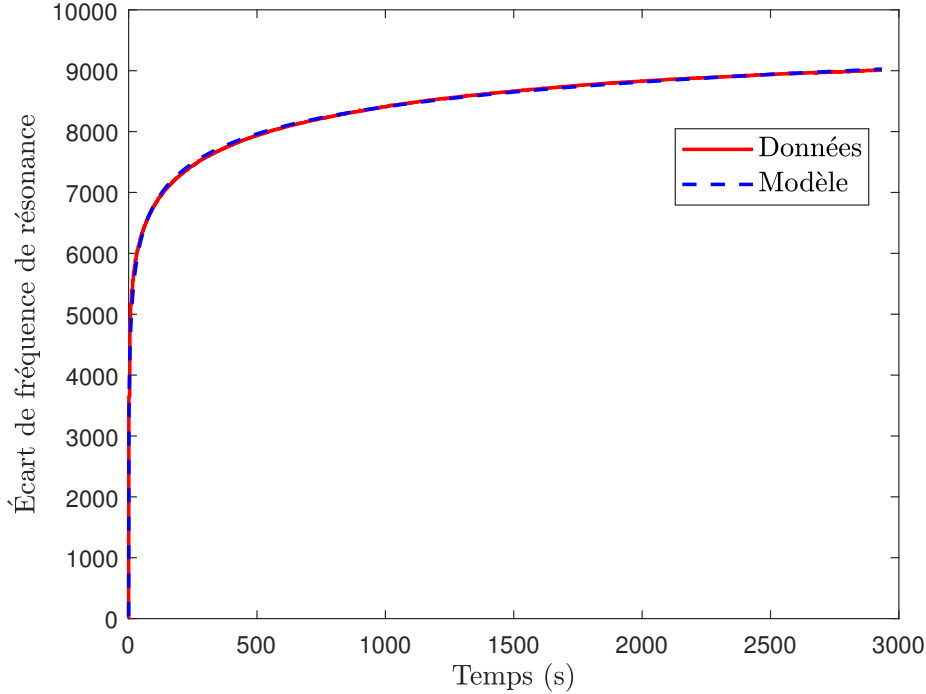


FIGURE 3.4: Comparaison de l'écart de fréquence de résonance mesurée (en rouge) avec celui obtenue avec le modèle (3.11)

A	C	α
-1.4144×10^{-23}	-1.1522×10^4	-0.1825

TABLE 3.2: Paramètres du modèle (3.13)

commande présenté au paragraphe 2.7.2 (équation (2.166)) et rappelé à présent dans l'équation (3.13) :

$$\frac{dx(t)}{dt} = A(x(t) + C)^{1-\frac{1}{\alpha}} \cdot u(t). \quad (3.13)$$

En considérant une entrée $u(t) = 1$, une optimisation sur les paramètres A , C et α donne les valeurs du tableau 3.2. Une comparaison entre les données et la réponse du modèle (3.13) est proposée par la figure 3.5. La réponse de ce dernier modèle est moins précise que celle donnée par la relation (3.11), mais l'est assez pour justifier l'utilisation de modèles non linéaires pour modéliser ce type de comportement. Notons également que $\alpha \approx \nu/2$.

Afin d'affiner ces modèles, une étude théorique du phénomène d'adsorption est effectuée dans la section qui suit, à l'aide du phénomène idéalisé qu'est l'Adsorption Séquentielle Aléatoire (ASA).

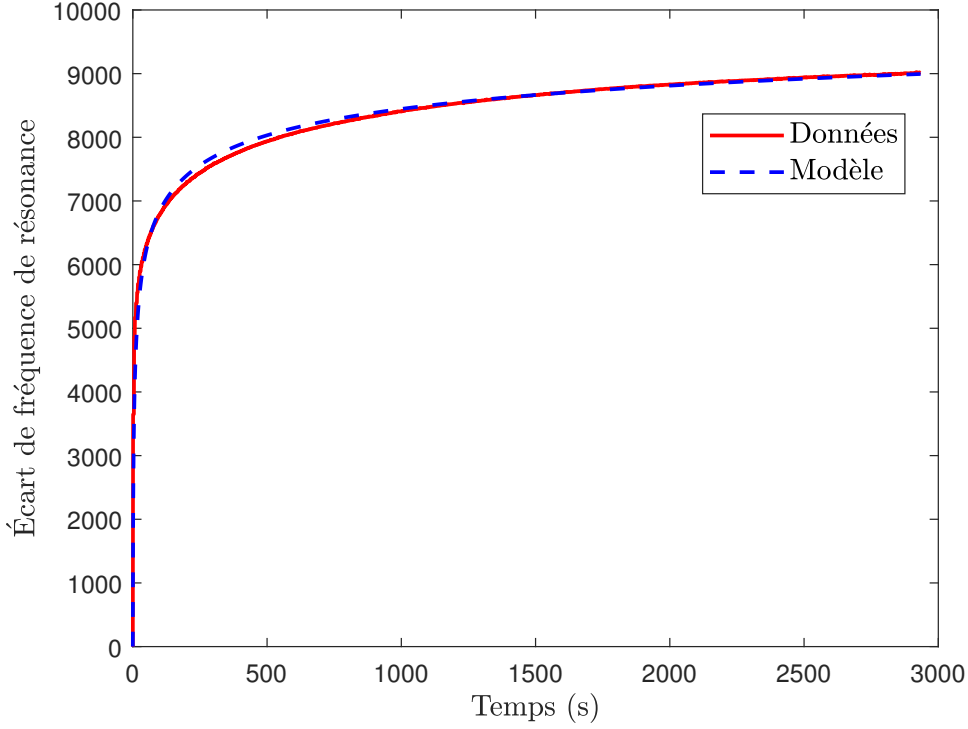


FIGURE 3.5: Comparaison de l'écart de fréquence de résonance mesurée (en rouge) avec celui obtenu avec le modèle (3.13)

3.3 Adsorption Séquentielle Aléatoire (ASA)

L'adsorption Séquentielle Aléatoire (ASA) est une vision idéalisée du phénomène d'adsorption, tel que celui provoquant l'effet de masse sur la couche sensible du capteur à ondes de Love décrit dans la partie précédente. Dans la partie 3.3.1, le phénomène d'ASA est défini puis différentes simulations stochastiques sont réalisées de sorte à mettre en évidence une dynamique de type puissance. Des modèles tels que ceux introduits dans les parties 2.7 et 3.4.2 sont alors utilisés pour capter ce phénomène. Dans la partie 3.4, le phénomène d'ASA sur des surfaces fractales est étudié et des modèles en lien avec la dimension de la surface sont proposés.

3.3.1 Cas 2D

Le phénomène d'ASA sur une surface 2D correspond, comme défini ci-dessous, au dépôt aléatoire (et contraint) de disques sur une surface.

Définition 12 (ASA 2D). *On considère une surface carrée S dans le plan de longueur d'arête L et d'aire L^2 . Les particules sont assimilées à des disques de rayon R ($R \ll L$). Le temps est subdivisé en instants : $t_0 = 0 \leq t_1 \leq \dots \leq t_k \in \mathbb{R}^+$, $k \in \mathbb{N}$, avec un pas Δt constant. À l'instant initial t_0 , la surface S est vide, puis à chaque instant t_i , $i > 0$, un disque $\mathcal{D}_{t_i}$ de rayon R et de centre (p, q) tente de se fixer sur S à une position aléatoire selon une loi uniforme. Il se fixe si et seulement si l'intersection de $\mathcal{D}_{t_i}$ avec tous les disques précédemment fixés sur S est vide.*

On s'intéresse en particulier à la densité de surface recouverte $\theta(t)$ par des disques au cours du temps. On note θ_∞ la densité asymptotique. D'après la littérature [28, 45, 128], on a

$$\theta_\infty = \lim_{t \rightarrow \infty} \theta(t) \approx 0.547. \quad (3.14)$$

Ce résultat est obtenu à l'aide de simulations. La valeur exacte n'est actuellement pas connue dans le cas 2D mais l'est en 1D [61].

Il est par ailleurs suggéré dans la littérature [45, 122, 116] que le comportement asymptotique, donc sur les temps longs, peut être décrit par une loi de puissance :

$$\theta(t) - \theta_\infty \sim t^{-1/2}. \quad (3.15)$$

Il existe plusieurs manières de simuler ce processus qui sont plus ou moins efficaces en termes de temps de calcul (par exemple dans [128]) et qui donnent donc une valeur asymptotique avec un degré de précision variable. Dans notre cas, connaître avec précision θ_∞ n'est pas indispensable, l'objet étant l'étude du comportement dynamique. Notre objectif en terme de simulation est d'avoir un bon aperçu du comportement de θ avec un temps de calcul raisonnable pour un ordinateur grand public. L'algorithme de simulation utilisé est donc le suivant et est détaillé dans l'annexe D.

Algorithme 2. Soit une surface carrée S de taille L . Un couple pseudo-aléatoire $c = (p, q)$ de nombres réels positifs qui suit une loi uniforme sur $[0, L]^2$ est généré. Un disque de rayon R et de centre c se fixe sur S si

1. Le disque est entièrement compris dans S . Cela est vrai si les deux conditions suivantes sont vérifiées : $p, q \geq R$ et $p, q \leq L - R$;
2. Le disque actuel n'intersecte aucun disque précédemment posé, c'est-à-dire : $d(c, c_k) \geq 2R$ où pour tout k , $c_k = (p_k, q_k)$ désigne le centre d'un disque précédemment posé sur S et $d(c, c_k) = \sqrt{(p - p_k)^2 + (q - q_k)^2}$ est la distance entre deux disques.

On peut voir dans la figure 3.6 un exemple de remplissage partiel d'une surface issu d'un tel algorithme. Il existe des portions de cette surface qui peuvent encore contenir un ou plusieurs disques ainsi que des portions qui ne pourront plus accueillir de disque supplémentaire.

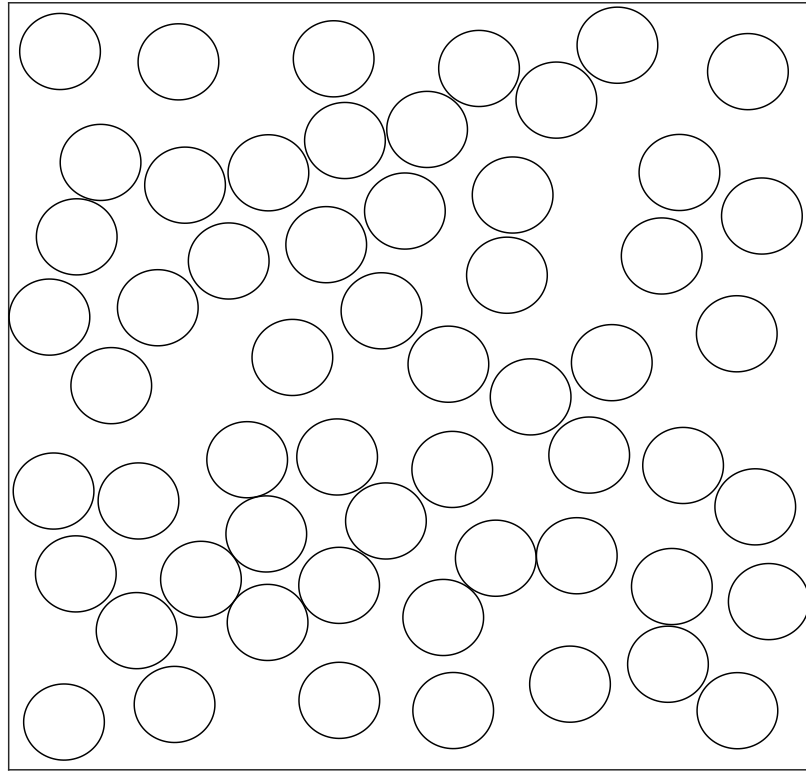
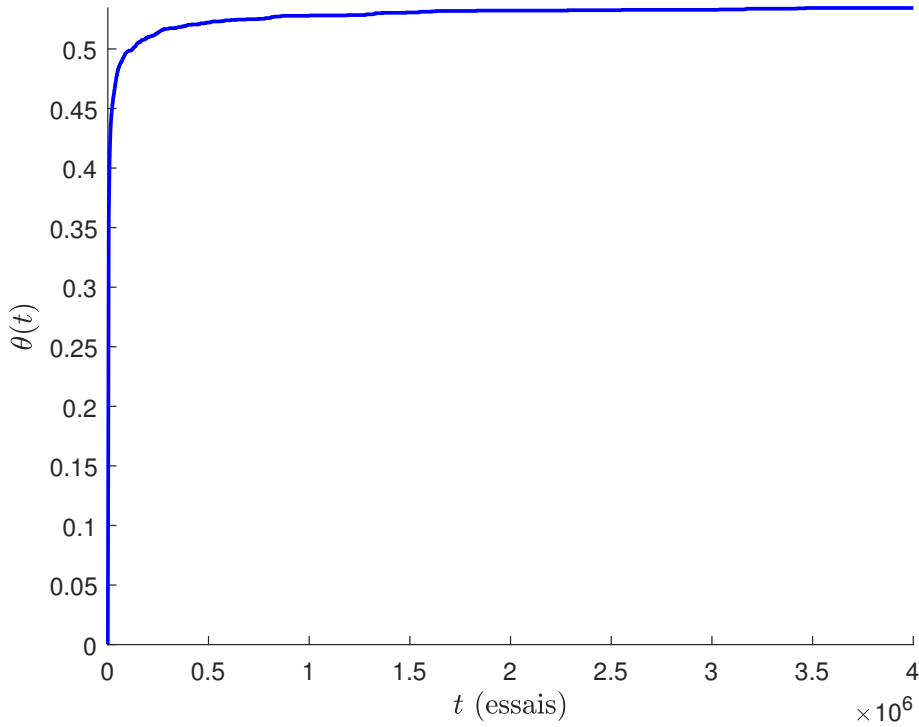


FIGURE 3.6: Exemple d'un remplissage partiel d'une surface par ASA

Sur la figure 3.7 est tracée la densité θ au cours du temps (des itérations de l'algorithme), pour une surface de taille $L = 50$ et $R = 0.5$.

FIGURE 3.7: Densité θ en fonction du temps

La valeur finale obtenue est ici $\theta_\infty = 0.5344$. Cette valeur est obtenue après 4×10^6 itérations (unités de temps). Il a fallu 918 534 itérations depuis la dernière valeur différente de θ pour obtenir ce θ_∞ .

Afin de lisser cette courbe, et donc pour faciliter son exploitation, on trace la valeur moyenne de la densité d'espace occupé θ obtenue après un assez grand nombre de simulations. Cette valeur moyenne sera notée par la suite $\theta_{\text{moyen}}(t)$. Avec 200 simulations, on obtient la courbe de la figure 3.8. Les barres apparaissant sur cette même figure correspondent aux fluctuations de la valeur à un instant donnée en fonction des différentes simulations stochastiques du processus.

Avant de mettre en évidence le comportement à mémoire longue selon la définition 1 du paragraphe 1.2.2, mettons en évidence le comportement en $t^{-1/2}$ grâce à la figure 3.9 en traçant θ en fonction de $t^{-1/2}$. L'obtention d'une droite sur les temps longs met en évidence cette loi de puissance sur cette gamme de temps.

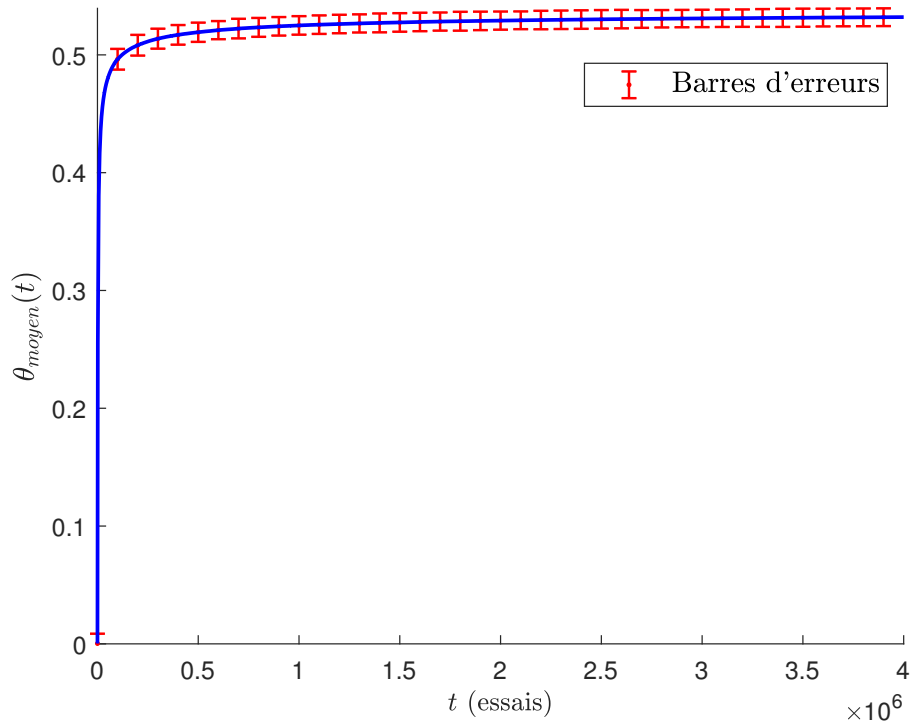
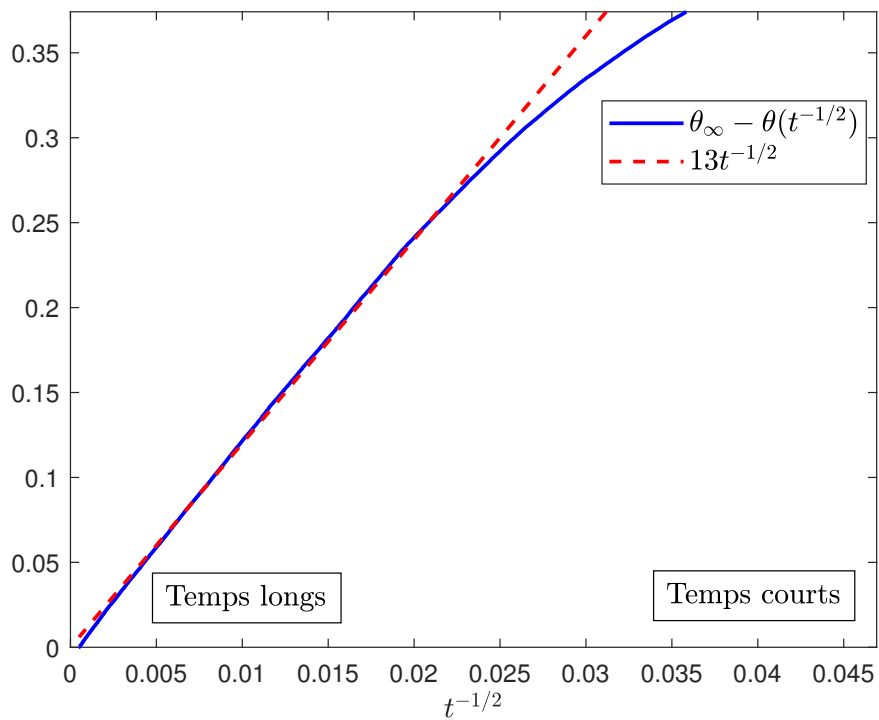
Afin de capturer le comportement non linéaire du processus ASA, à l'image du modèle issu de l'analyse du capteur à ondes de Love, il est proposé d'utiliser un modèle affine en l'entrée :

$$\dot{y}(t) = f(y) \cdot u(t), \quad (3.16)$$

où

- $y : \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}_+$ est la densité de places libres sur la surface par rapport au temps, $y(t) = 1 - \theta(t)$;
- $u : \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}_+$ est le flux de particules qui frappe la surface ;
- $f : \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}_+$ est une fonction à déterminer.

Notons que l'initialisation de ce modèle nécessite uniquement la connaissance de $y(0)$. Il s'agit d'un modèle du 1^{er} ordre. D'un point de vue physique, l'information des places libres est suffisante pour l'initialisation du processus. Avec une distribution des disques semblable à celle

FIGURE 3.8: Densité moyenne $\theta_{moyen}(t)$ FIGURE 3.9: Mise en évidence du comportement en $t^{-1/2}$ sur les temps longs

générée par le processus ASA, la connaissance exacte de la position de chaque disque n'est pas nécessaire.

Afin de déterminer la fonction f apparaissant dans le modèle (3.16), il est proposé de procéder comme suit. Pour tout $n \in \llbracket 0, N \rrbracket$, la dérivée $\dot{y}$ de $Y_{moyen}(t) = 1 - \theta_{moyen}(t)$ (densité d'espaces

libres) est calculée :

$$\dot{y}(n) \approx \frac{Y_{\text{moyen}}(n+1) - Y_{\text{moyen}}(n-1)}{2}. \quad (3.17)$$

Cette dérivée est tracée sur la figure 3.10. Sur la figure 3.11, $\dot{y}$ est tracé comme une fonction de

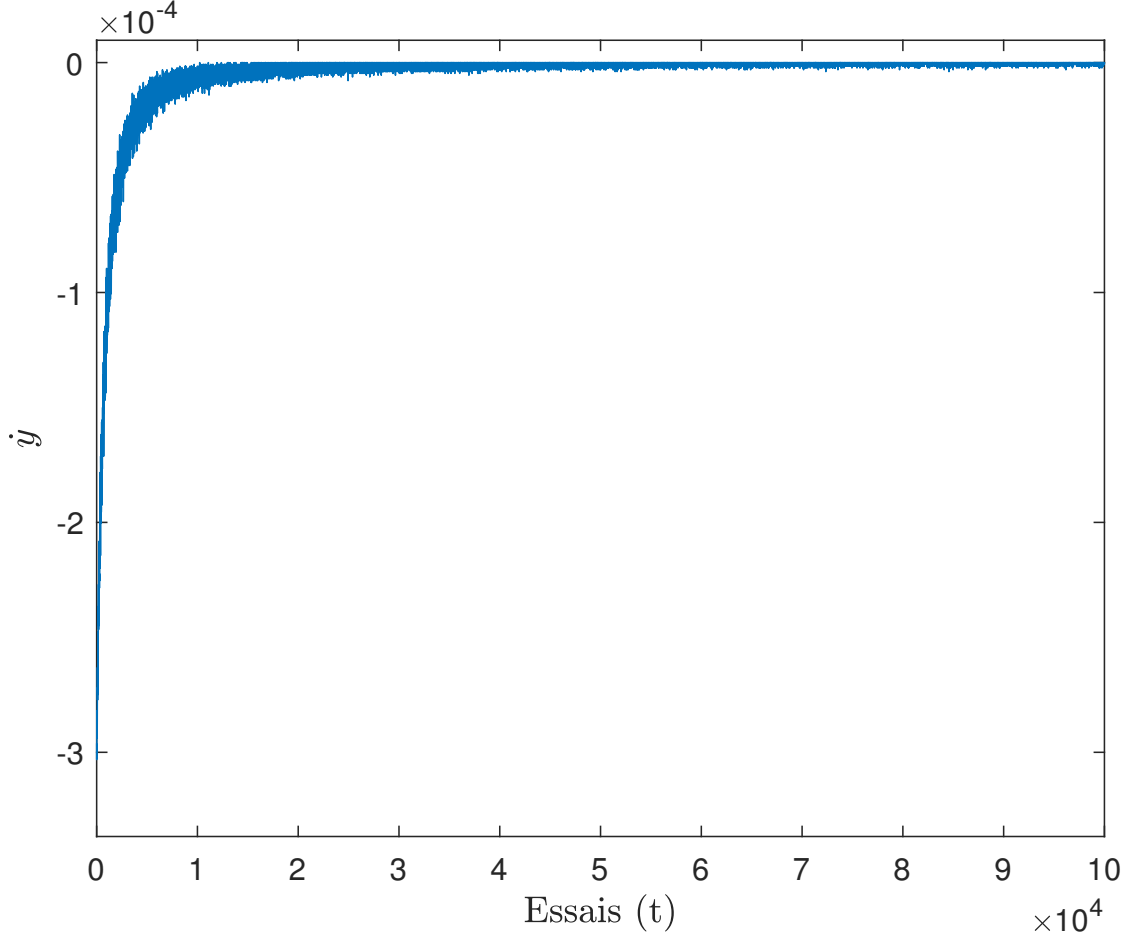


FIGURE 3.10: Approximation de la dérivée $\dot{y}$

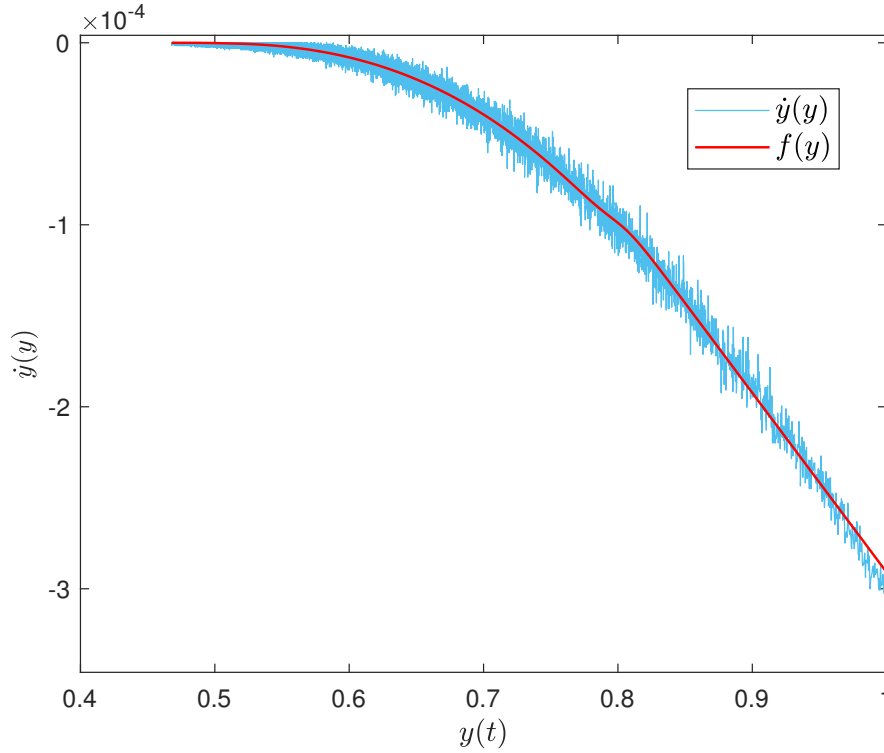
y (on considère que le flux de particules $u(t) = 1$). La courbe de $\dot{y}(y(t))$ est ensuite identifiée par la fonction (3.18) dont les paramètres a_i sont obtenus par minimisation d'un critère quadratique :

$$f(y) = a_0 y + a_1 y + a_2 y^2 + a_3 y^3 + a_4 y^4. \quad (3.18)$$

Une justification théorique de cette classe de modèle apparaît dans [91]. Le modèle proposé pour la cinétique ASA des particules anisotropes est basé sur le concept de la fonction de surface disponible (ASF) et est défini par

$$\frac{d\theta(t)}{dt} = \frac{1}{2\pi} \int \Phi(\theta(t), \Omega) d\Omega \quad (3.19)$$

où $\Phi(\theta(t), \Omega)$ est la probabilité d'ajouter une nouvelle particule d'orientation Ω à la surface lorsque le recouvrement est de $\theta(t)$. La fonction $\Phi(\theta(t), \Omega)$ ne peut être obtenue exactement, mais des approximations peuvent être calculées sous la forme de développement en série pour les régimes de recouvrement faibles et élevés. Ces deux approximations sont ensuite combinées pour fournir une description approximative de la cinétique sur toute la plage de remplissage. Les deux formules d'interpolation suivantes sont proposées dans [91] :

FIGURE 3.11: Fonction $\dot{y}(y(t))$ et son approximation

$$\Phi(\zeta) = (1 - \zeta)^4(1 + c_1\zeta + c_2\zeta^2) \quad \text{avec} \quad \zeta = \frac{\theta(t)}{\theta_\infty} \quad (3.20)$$

et

$$\Phi(\zeta) = \frac{(1 - \zeta)^4}{(1 + c_1\zeta + c_2\zeta^2)}. \quad (3.21)$$

Les paramètres c_1, c_2, d_1 et d_2 sont ensuite calculés pour ajuster les développements en série de la fonction $\Phi(\theta(t), \Omega)$ dans (3.19). Une forme similaire à (3.20) est utilisée dans [3] et [27] :

$$\Phi(\zeta) = (1 - \zeta)^4(1 + c_1\zeta + c_2\zeta^2 + c_3\zeta^3). \quad (3.22)$$

Dans [3], les paramètres c_1, c_2 , et c_3 sont calculés comme dans [91] et pour ajuster les données d'adsorption d'insuline [27]. Ces travaux, et notamment [91], justifient pleinement l'intérêt des modèles non linéaires pour la modélisation cinétique du ASA et par extension pour la cinétique d'adsorption en temps physique. Cependant, ces modèles ont une forme contrainte pour satisfaire les comportements asymptotiques pour un recouvrement de surface faible et élevé, ce qui réduit la précision du modèle en dehors de ces régimes de recouvrement.

Dans notre approche, un développement plus général est considéré sous la forme d'un modèle (3.16)-(3.18). Les paramètres a_0, a_1, a_2, a_3, a_4 donnés dans la table 3.3 ont été obtenus par minimisation du critère quadratique.

a_0	a_1	a_2	a_3	a_4
2.8163×10^{-4}	-9.4715×10^{-4}	-6.4938×10^{-4}	0.0050	-0.0043

TABLE 3.3: Paramètres de f de la relation (3.18)

La comparaison de $f(y)$ avec l'approximation $\dot{y}(y)$ calculée précédemment est également représentée sur la figure 3.11. Le diagramme de la figure 3.12 est une réalisation de la relation

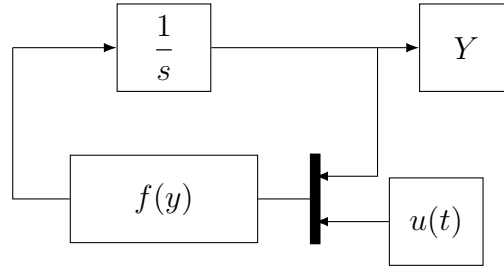
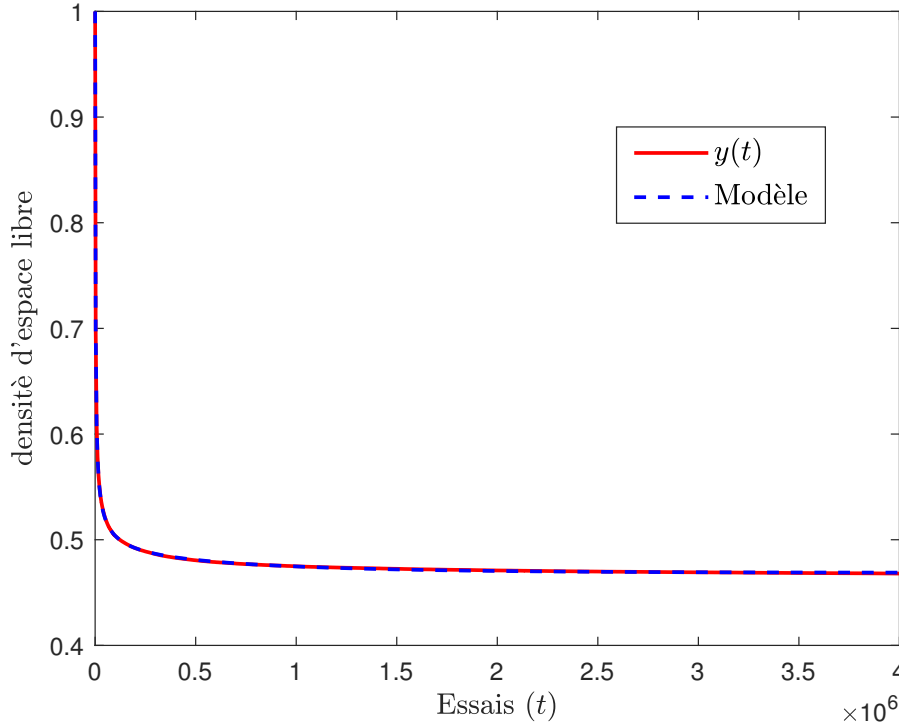


FIGURE 3.12: Schéma-bloc pour la simulation du modèle (3.16)

(3.16) où f est donnée par la relation (3.18). Ce diagramme est utilisé pour la simulation de la densité de surface libre en fonction du temps.

La figure 3.13 propose une comparaison de la réponse du modèle (3.16) pour $u(t) = 1$, notée ici Y_{approx} et de la courbe Y_{mean} correspondant à la densité moyenne de place libres au cours du temps.

FIGURE 3.13: Approximation pour $u(t) = 1$ (en bleu) de la densité moyenne Y_{mean} de surface libre (en rouge)

3.3.2 Cas fractal

Une généralisation du phénomène ASA étudié dans la partie précédente concerne le cas où la surface considérée a une dimension non entière. Le cas fractal est donc considéré sur des fractales déterministes et obtenues récursivement. Il idéalise le cas de surfaces réelles présentant des porosités, des irrégularités, et ce faisant, pouvant avoir une structure fractale.

Mise en évidence du comportement de type puissance

Pour tout type de surface, il est suggéré dans la littérature [26] [116] que la densité de surface recouverte sur les temps longs du ASA suit une loi de puissance :

$$\theta_\infty - \theta(t) \sim t^{-1/d}, \quad (3.23)$$

où d est la dimension de Hausdorff de la surface sur laquelle les disques se posent. La surface fractale est considérée comme un ensemble de points contenus dans le carré $[0, 1] \times [0, 1]$.

Les surfaces fractales considérées sont illustrées dans la figure 3.14. Sur chacune des surfaces fractales citées dans la figure 3.14, un processus ASA a été effectué. Les densités des disques adsorbés en fonction du temps (nombre d'essais) pour chacune des fractales considérées sont présentées dans la figure 3.15. Comme le montre [26], la valeur asymptotique de la densité dépend du nombre d'itérations du processus de construction fractale. Le nombre d'itérations nécessaire pour obtenir des résultats pertinents semble être supérieur à 6. Les valeurs finales données dans le tableau 3.4 sont celles proposées dans [26] et sont proches de celles tracées dans la figure 3.15. Les différences peuvent être expliquées par des différences dans les conditions de simulation (le nombre d'itérations dans le processus de construction de la fractale, le nombre d'essais, le rapport entre la taille des disques et la taille de la fractale).

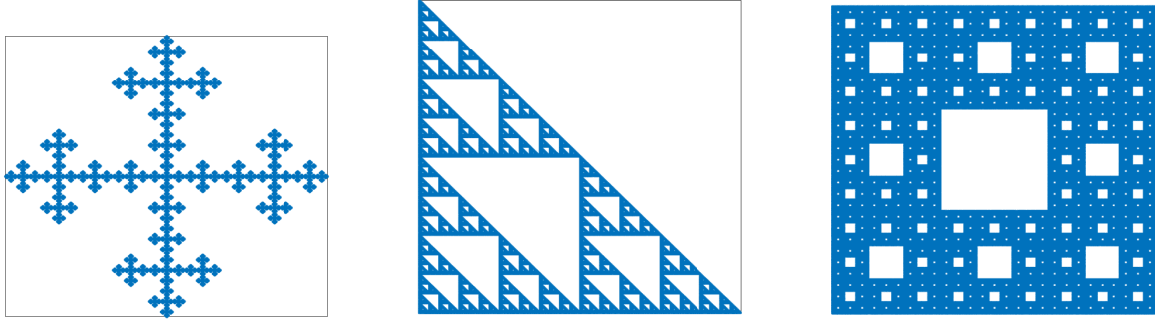


FIGURE 3.14: Surface de Vicsek (gauche), triangle de Sierpinski (milieu) et tapis de Sierpinski (droite)

Fractale	Valeur finale
Vicsek	~ 0.68
Triangle de Sierpinski	~ 0.62
Tapis de Sierpinski	~ 0.58

TABLE 3.4: Valeurs finales de la densité des disques adsorbés

La figure 3.16 montre $\theta_\infty - \theta$ en fonction de $t^{-1/d}$, où d est la dimension de la fractale. Cette figure met en évidence que la densité des disques adsorbés a un comportement asymptotique de type puissance de la forme

$$\theta_\infty - \theta(t) \sim Kt^{-1/d}, \quad (3.24)$$

où d est la dimension de la surface fractale (dimension de Hausdorff). La dimension de Hausdorff de la fractale de Vicsek est $d_V = \frac{\log(5)}{\log(3)} \approx 1,4649$, $d_{ST} = \frac{\log(3)}{\log(2)} \approx 1,585$ pour le triangle de Sierpinski et $d_{SC} = \frac{\log(8)}{\log(3)} \approx 1,8928$ pour le tapis de Sierpinski. La ligne droite sur chaque sous-figure de la figure 3.16 est le tracé de $Kt^{-1/d}$ permettant de mettre en évidence le comportement de type puissance.

La figure 3.16 confirme que les résultats des simulations sont conformes aux comportements de loi de puissance attendus en $-\frac{1}{d}$.

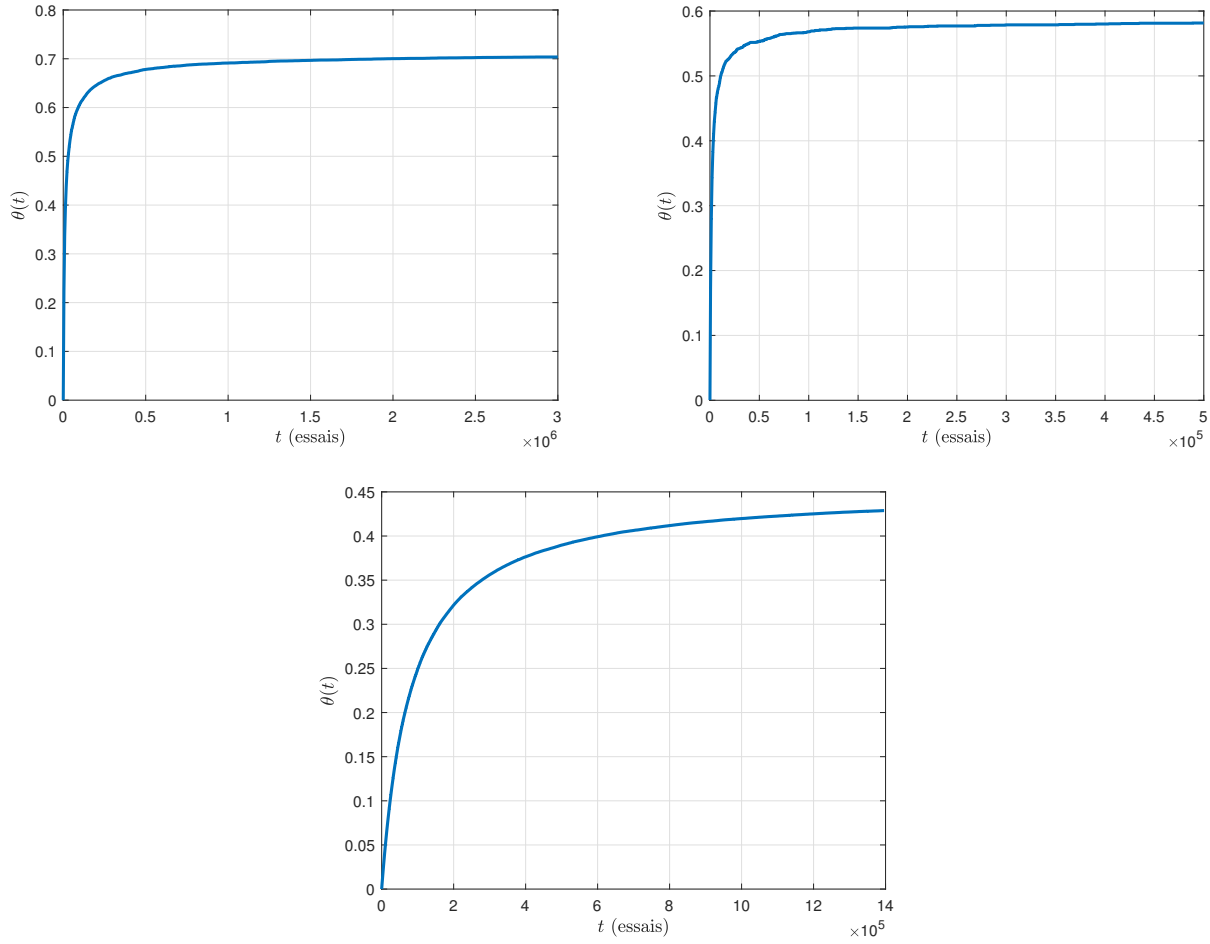


FIGURE 3.15: Densités des disques adsorbés sur la fractale de Vicsek (haut à gauche), le triangle de Sierpinski (haut à droite) et le tapis de Sierpinski (bas).

Modélisation détaillée sur la fractale de Vicsek

Comme pour le cas 2D, un modèle affine en l'entrée (2.166) est considéré pour modéliser la cinétique d'adsorption sur la fractale de Vicsek. Dans un premier temps, il est proposé d'utiliser un modèle de la forme :

$$\dot{x}(t) = A(x(t) + C)^{1-\frac{1}{\alpha}} \cdot u(t). \quad (3.25)$$

La fonction $u(t)$ peut être considérée comme un flux de particules en entrée et $x(t)$ est l'état et la sortie du modèle et correspond à la densité de surface couverte. $A \in \mathbb{R}$, $C \in \mathbb{R}$ et $-1 < \alpha < 1$ ($\alpha \in \mathbb{R}^*$). Ce modèle produit des trajectoires similaires à la dynamique de remplissage du ASA comme le montrent les figures 2.24 et 2.25, c'est-à-dire avec des croissances très rapides pendant les temps courts, suivies de progressions très lentes vers l'état d'équilibre.

Une optimisation a été effectuée afin d'obtenir des valeurs numériques des paramètres A et C . Puisque le comportement de type puissance ne tient que pour le régime de recouvrement élevé (temps longs) du processus ASA, deux critères d'optimisation ont été utilisés :

$$\text{critère 1 :} \quad \varepsilon = \sum_{t=0}^{t_{max}} (\theta(t) - \theta_{model}(t))^2 \quad (3.26)$$

$$\text{critère 2 :} \quad \varepsilon_{TL} = \sum_{t=t_1}^{t_{max}} (\theta(t) - \theta_{model}(t))^2. \quad (3.27)$$

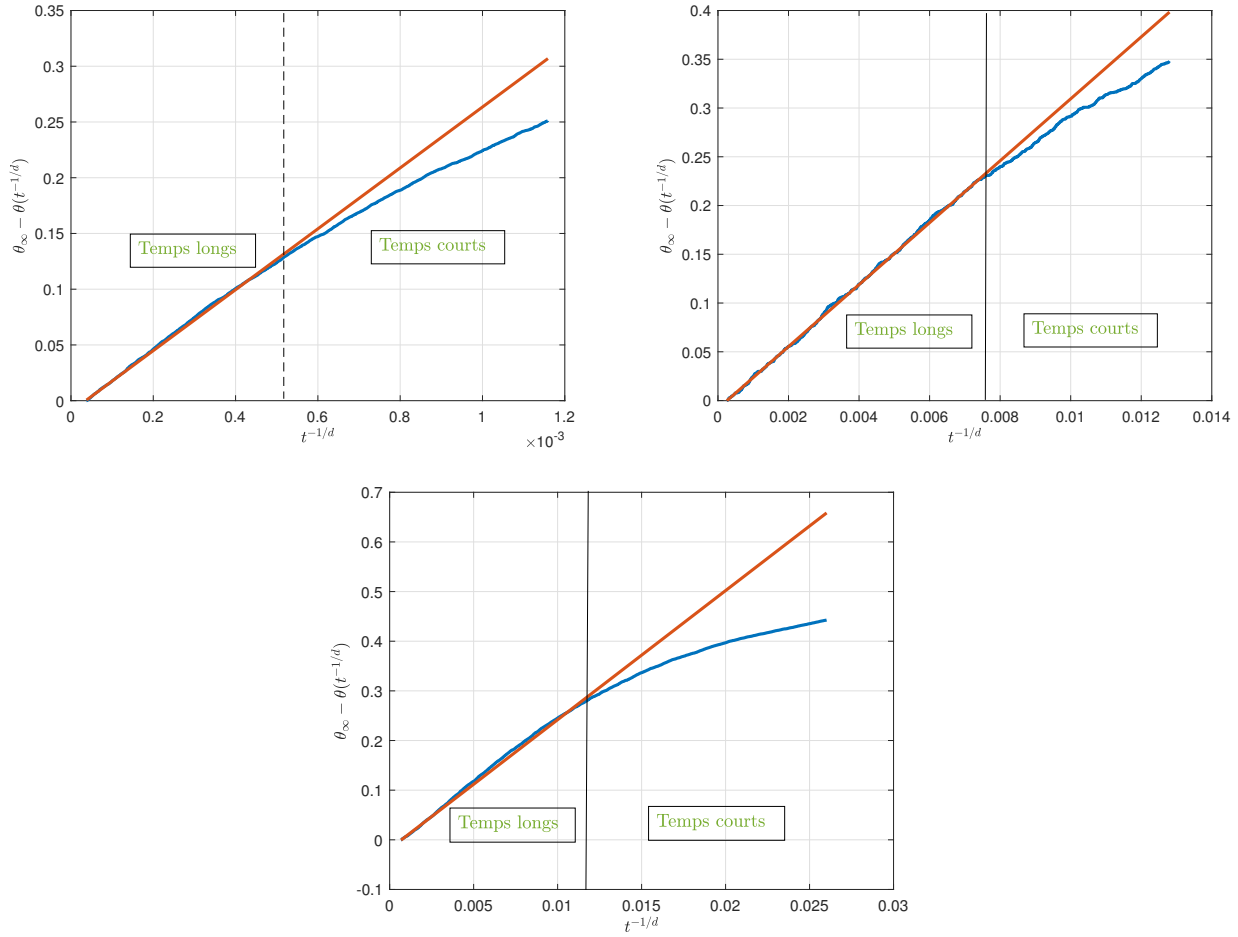


FIGURE 3.16: Comportement sur les temps longs du ASA sur la fractale de Vicsek (haut à gauche), le triangle de Sierpinski (haut à droite) et le tapis de Sierpinski (bas).

Dans (3.26) et (3.27), t_{max} désigne le dernier point temporel dans les données ASA considérées et t_1 désigne la première valeur temporelle considérée pour le calcul du critère.

Pour la fractale de Vicsek, le paramètre α a été imposé égal à $-\frac{1}{d_V}$ et le résultat de cette optimisation avec le critère ε est donné dans la figure 3.17. Les paramètres suivants ont été obtenus : $A = 4.5743 \times 10^{-4}$ et $C = -0.7137$. La même optimisation a également été effectuée en utilisant le critère ε_{TL} et $t_1 = 1 \times 10^5$. Une comparaison des données de densité ASA et des modèles obtenus avec le critère ε et ε_{LT} est présentée sur la figure 3.18 uniquement pour les temps longs.

Même si les paramètres du modèle ont été calculés en utilisant le critère ε_{LT} , le critère ε a été calculé pour le modèle résultant, et inversement, le critère ε_{LT} a été calculé avec le modèle obtenu par la minimisation du critère ε . Les résultats sont reportés dans le tableau 3.5. Ce tableau confirme que ε_{LT} est plus faible lorsque les paramètres sont calculés avec ε_{LT} . Le modèle (3.25) est donc un très bon candidat pour modéliser la dynamique de type puissance (sur les temps longs) et obtenir un compromis lorsqu'il est calculé avec le critère ε .

Afin de mieux gérer le compromis de fidélité du modèle sur les temps courts ou long et de réduire cette erreur, le modèle plus général utilisé dans le cas 2D est à présent considéré :

$$\dot{x}(t) = f(x(t)) \cdot u(t), \quad (3.28)$$

où f est une fonction polynomiale :

$$f(x) = a_0 + a_1x + a_2x^2 + a_3x^3 + a_4x^4. \quad (3.29)$$

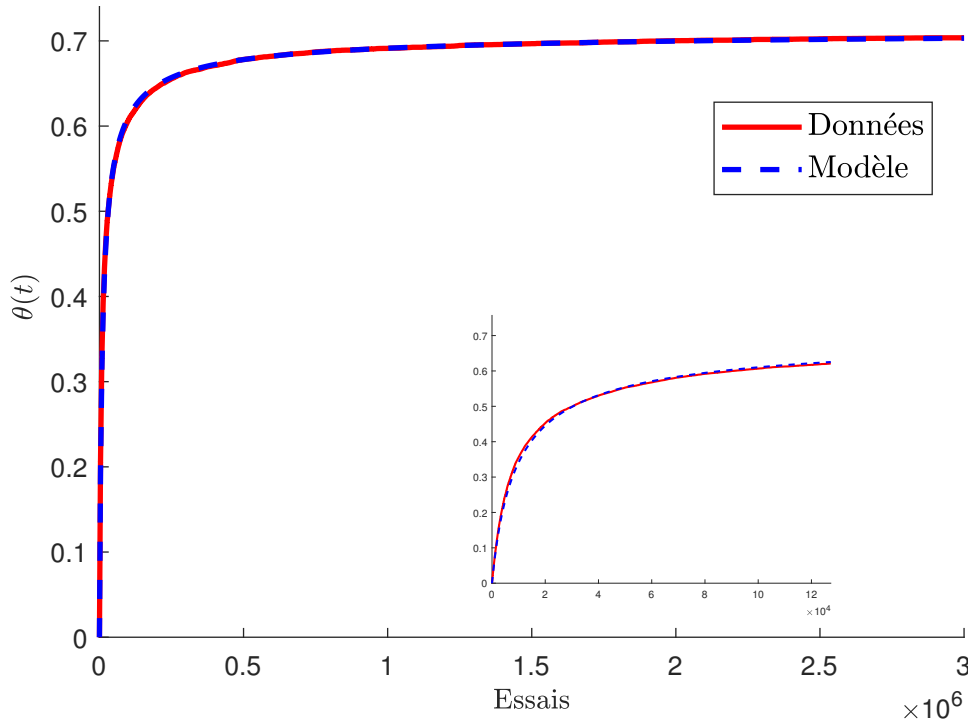


FIGURE 3.17: Comparaison des données de densité ASA avec la réponse du modèle (3.25) avec le critère ε (zoom sur les premiers instants au centre de la figure).

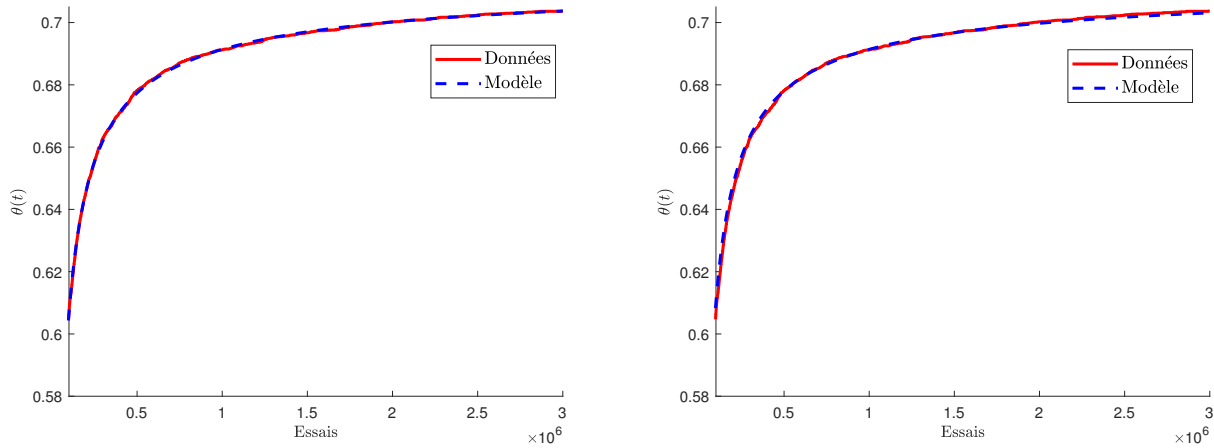


FIGURE 3.18: Comparaison sur les temps longs des données de densité ASA avec la réponse du modèle (3.25) optimisée avec le critère ε_{LT} (gauche) et avec le critère ε (droite).

La même méthode que dans le cas 2D est utilisée afin de déterminer les paramètres de la fonction f de l'équation (3.29). Si $u(t) = 1$, et selon la relation (3.28), le polynôme $f(x)$ évalué en $\theta(t)$ est égal à la dérivée de $\theta(t)$. Une optimisation a été effectuée sur les paramètres a_i afin de minimiser l'erreur quadratique ε .

La fonction $\dot{\theta}(t)$ est calculée numériquement à partir des données de la figure 3.15 et la fonction optimisée f est tracée dans la figure 3.19 en fonction de $\theta(t)$.

Une comparaison des données de densité ASA et de la réponse du modèle (3.28) est proposée par la figure 3.20.

Tant sur les temps long que sur l'ensemble des données, les erreurs sont plus faibles qu'avec le modèle (3.25) et les méthodes d'optimisation associés. Même si l'erreur sur les temps long est plus grande que lorsque l'optimisation est faite uniquement sur les temps long (voir tableau 3.5), le compromis est meilleur. Ainsi, le modèle (3.28) avec f définie par la relation (3.29) est

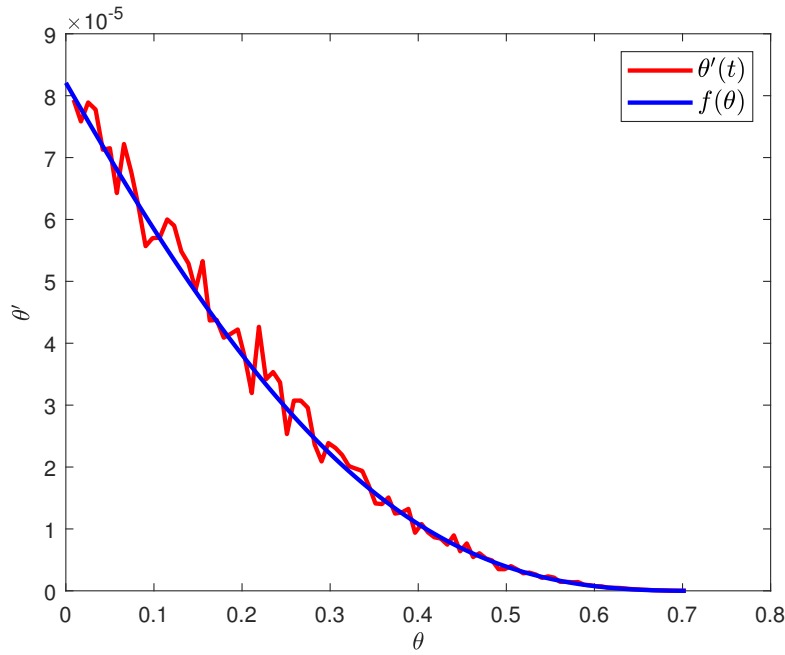


FIGURE 3.19: Approximation de la dérivée de $\theta(t)$ (rouge) et fonction f évaluée en θ après optimisation (bleu)

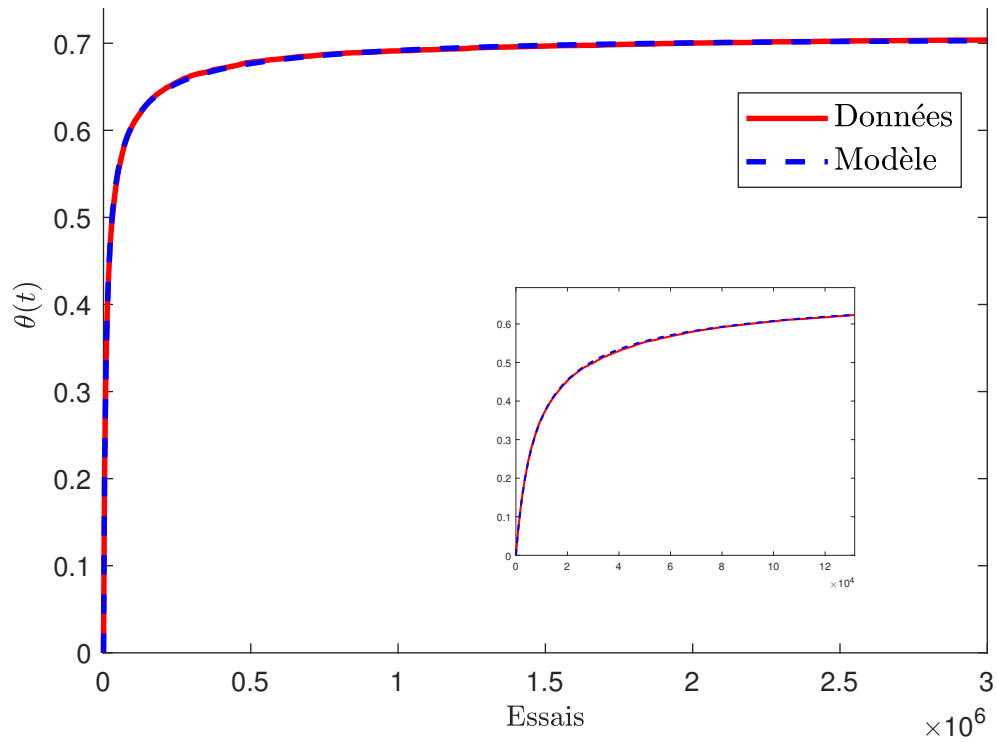


FIGURE 3.20: Comparaison entre les données de densité ASA (rouge) et le modèle (3.28) (bleu)

meilleur que le modèle (3.25).

Les paramètres a_0, a_1, a_2, a_3, a_4 de la fonction f de la relation (3.29) obtenus après optimisation sont donnés dans la table 3.6

Résultats pour les autres fractales

Pour le triangle de Sierpinski, le résultat de la modélisation avec le modèle (3.28) est présenté dans la figure 3.21. Les paramètres a_0, a_1, a_2, a_3, a_4 donnés dans le tableau 3.7 ont été obtenus.

	Modèle (3.25)	Modèle (3.25)	Modèle (3.28)
	avec ε	avec ε_{LT}	avec ε
ε_{LT}	2.0669	0.3012	1.6765
ε	5.5433	11.9854	2.2896

TABLE 3.5: Valeurs des critères pour les trois approches de modélisation

a_0	a_1	a_2	a_3	a_4
8.2105×10^{-5}	-2.4909×10^{-4}	9.6858×10^{-5}	2.9337×10^{-4}	-2.3250×10^{-4}

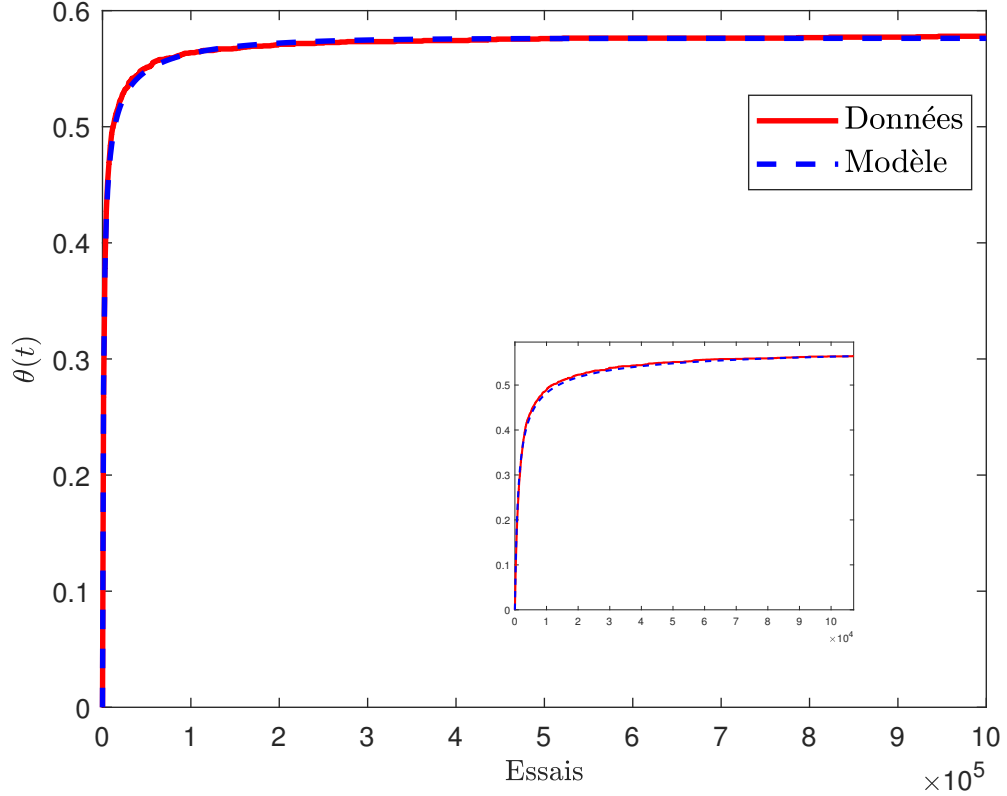
TABLE 3.6: Paramètres de f de la relation (3.29)

FIGURE 3.21: Comparaison entre les données de densité ASA (rouge) et le modèle (3.28) (bleu) pour la fractale du ASA sur le triangle de Sierpinski.

a_0	a_1	a_2	a_3	a_4
4.8939×10^{-4}	-1.7073×10^{-3}	3.0119×10^{-4}	4.1781×10^{-3}	-3.6734×10^{-3}

TABLE 3.7: Paramètres de f de la relation (3.29) pour la modélisation du triangle de Sierpinski

L'erreur avec le critère ε (relation (3.26)) est la suivante

$$\varepsilon = 2.7037. \quad (3.30)$$

Pour le tapis de Sierpinski, le résultat de la modélisation avec le modèle (3.28) est présenté dans la figure 3.22.

Les paramètres a_0, a_1, a_2, a_3, a_4 donnés dans le tableau 3.7 ont été obtenus.

L'erreur avec le critère ε (relation (3.26)) est la suivante

$$\varepsilon = 1.2337. \quad (3.31)$$

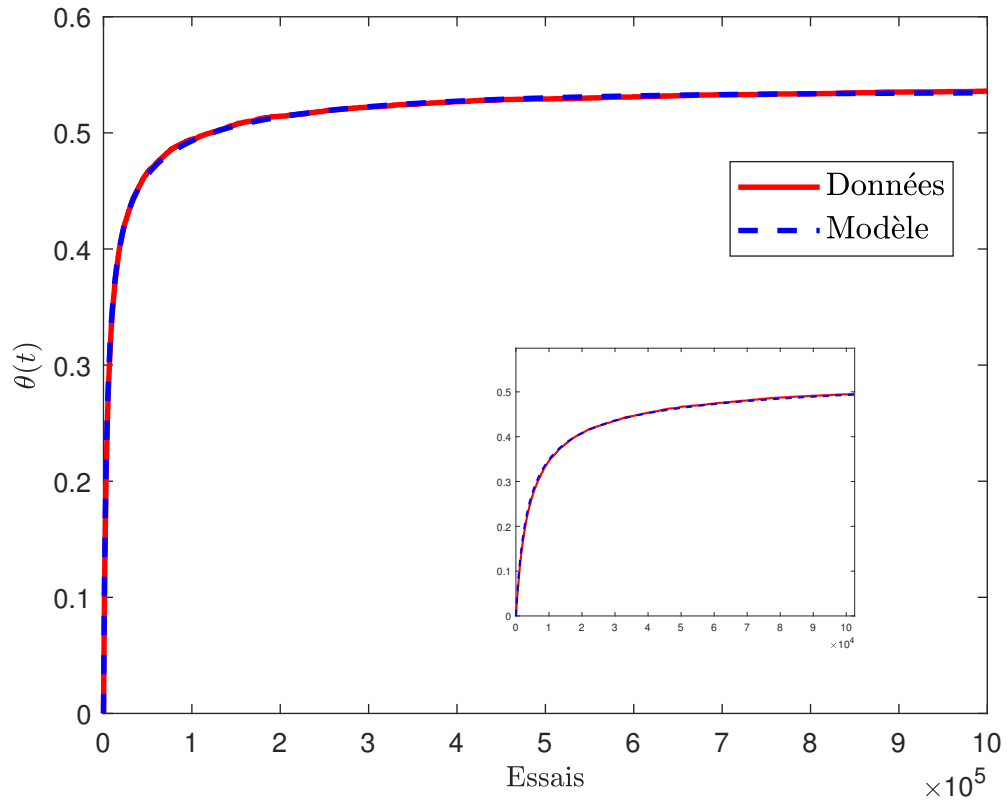


FIGURE 3.22: Comparaison entre les données de densité ASA (rouge) et le modèle (3.28) (bleu) pour la fractale du tapis de Sierpinski

a_0	a_1	a_2	a_3	a_4
1.3388×10^{-4}	-5.6145×10^{-4}	4.1346×10^{-4}	8.5644×10^{-4}	-1.0131×10^{-3}

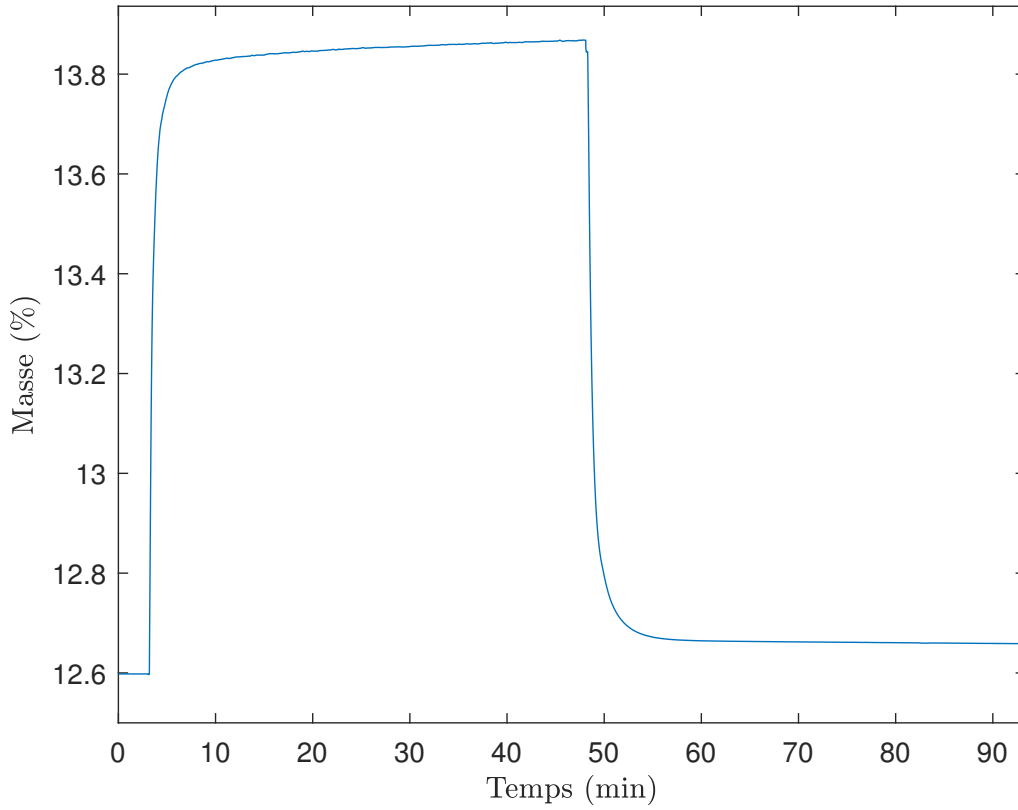
TABLE 3.8: Paramètres de f dans la relation (3.29) pour la modélisation du ASA sur le tapis de Sierpinski

L'adsorption a été étudié dans ce paragraphe via le phénomène idéalisé qu'est l'ASA et différentes méthodes de modélisation ont été étudiées pour modéliser ce processus. Ces méthodes vont être appliquées à des données réelles de dépôt de CO₂ sur une surface sensible dans la section qui suit.

3.4 Modélisation du dépôt de CO₂

Cette partie est dédiée à la modélisation du phénomène d'adsorption de CO₂ sur du cuivre hexacyanoferrate. Les données expérimentales proviennent de l'article [81]. Dans cette application, la couche sensible est composée de particules poly-dispersées de tailles comprises entre 20 et 50 nm. Les particules s'agrègent pour former un réseau poreux. L'environnement de la couche sensible est composé de N₂ (diazote) à $t = 0$. L'adsorption se produit alors en passant d'une atmosphère de N₂ à du CO₂, sans occuper de sites spécifiques (le CO₂ entre à la fois dans les grandes et petites cavités). Le phénomène contraire, le passage d'une atmosphère de CO₂ à du N₂ déclenche le phénomène de désorption. Les instruments utilisés mesurent la masse de CO₂ adsorbé dans le temps. La figure 3.23 montre la cinétique d'adsorption-désorption de CO₂.

Dans la suite, l'instant 0 sera celui du début de l'adsorption.

FIGURE 3.23: Cinétique d'adsorption/désorption du CO_2

3.4.1 Modèles cinétiques existants pour modéliser l'adsorption et limitations

Différentes classes de modèles dédiés au phénomène d'adsorption sont présentées dans [13]. Si $q(t)$ désigne la quantité de particules adsorbées, les modèles discutés expriment le taux d'adsorption $\frac{dq(t)}{dt}$ en fonction de la différence $q_e - q(t)$, où q_e désigne la quantité de particules adsorbées à l'équilibre. Les modèles suivants ont été proposés :

— Lagergren, 1898 [63] :

$$\frac{dq(t)}{dt} = k_1(q_e - q(t)) ; \quad (3.32)$$

— Lopes et al. [69] :

$$\frac{dq(t)}{dt} = k_2 t^{-h} (q_e - q(t)) \text{ avec } 0 \leq h \leq 1 ; \quad (3.33)$$

— Ho et Mckay, 2000 [55] :

$$\frac{dq(t)}{dt} = k_3 (q_e - q(t))^2 ; \quad (3.34)$$

— Brouers et Sotolongo-Costain, 2006 [19] :

$$\frac{d^\alpha q(t)}{dt^\alpha} = k_4 (q_e - q(t))^n. \quad (3.35)$$

Si $\theta(t) = \frac{q(t)}{q_m}$ désigne le taux de surface recouverte, où q_m est la quantité maximale de particules adsorbées et si c désigne la concentration de particules proche de la surface, le modèle suivant a également été proposé par Haerifar et Azizian en 2012 [52] :

$$\frac{d\theta(t)}{dt} = k_5 t^{-h} c (1 - \theta(t)) \text{ avec } 0 \leq h \leq 1. \quad (3.36)$$

Parmi tous ces modèles, le plus réaliste semble être celui de la relation (3.36), car les précédents ne prennent pas explicitement en compte la concentration de particules près de la surface. Par contre si l'on considère une analogie entre l'adsorption physique et le processus ASA idéalisé (voir section 1.4.2 et 3.3), une étude approfondie [122], [45], [116] du processus ASA révèle que le comportement de type puissance introduit dans [52] et [13] par le facteur t^{-h} ne s'applique pas pendant tout le processus mais n'est valide que de manière asymptotique lorsque le remplissage est proche de la saturation. Ainsi, il ne doit pas être utilisé pour ajuster la cinétique des temps courts. De plus ces modèles ont une singularité au temps $t = 0$.

Pour chacun des modèles précédents et un modèle non entier, une comparaison d'erreurs quadratiques est effectuée dans les paragraphes qui suivent et dans l'ordre de leur complexité, entre la réponse du modèle et les données de dépôt de CO₂ de la section précédente.

Si on note $d(n)$ la n -ième donnée d'adsorption de CO₂, ces erreurs quadratiques sont définies par

$$\varepsilon = \sum_n (q(n) - d(n))^2. \quad (3.37)$$

Modèle de Lagergren

Le modèle de Lagergren défini par la relation (3.32) est un modèle linéaire et stationnaire, du premier ordre. Son avantage est qu'il ne prend en compte qu'un seul paramètre. Cependant, comme le montre la figure 3.24, il est peu précis, surtout au regard des autres modèles analysés.

Une optimisation sur le paramètre k_1 donne le résultat de la figure 3.24, avec $k_1 = 0.017$ et une erreur quadratique $\varepsilon = 4.7766$.

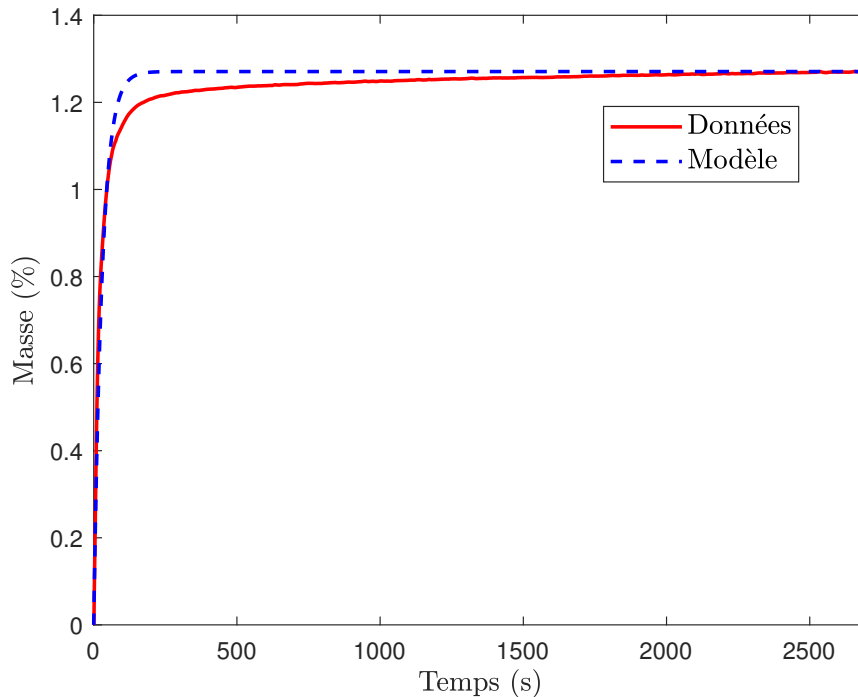


FIGURE 3.24: Comparaison entre les données d'adsorption de CO₂ (rouge) et le modèle de Lagergren (3.32) (bleu)

Modèle de Ho et Mckay

Le modèle de Ho et Mckay est défini par la relation (3.34). Ce modèle est non linéaire et stationnaire. Comme le montre la figure 3.25, il est beaucoup plus précis que le précédent et n'est défini qu'avec un seul paramètre (comme le modèle précédent), qui après optimisation prend la valeur $k_2 = 0.0297$ pour une erreur quadratique $\varepsilon = 0.5864$.

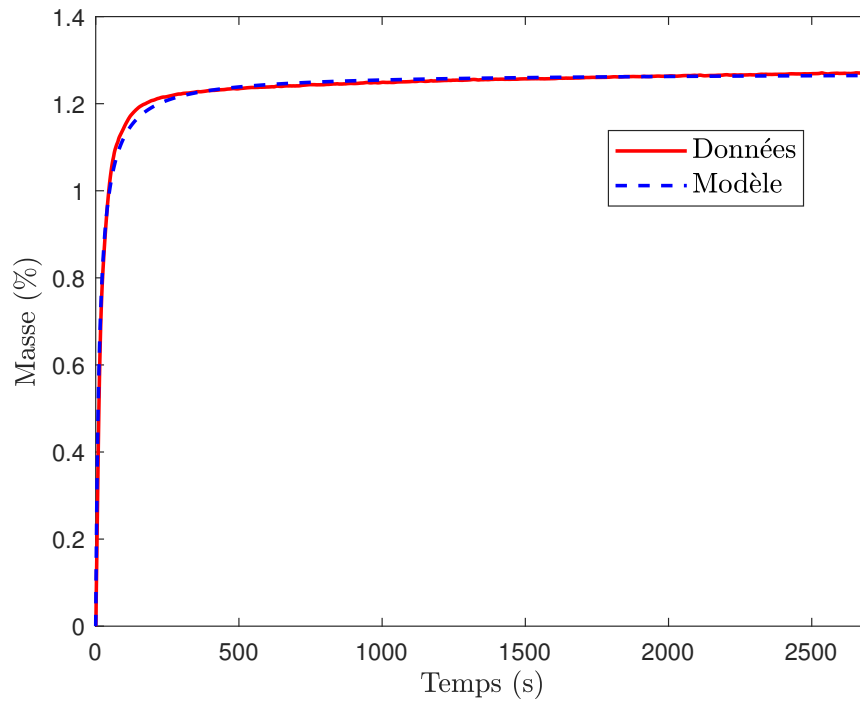


FIGURE 3.25: Comparaison entre les données d'adsorption de CO_2 (rouge) et le modèle de Ho et McKay (3.34) (bleu)

Modèle de Lopes et al.

Le modèle de Lopes et al. est défini par la relation (3.33). Il s'agit d'un modèle non stationnaire ayant une singularité en 0, prenant en compte deux paramètres notés k_3 et h . Après optimisation sur ces deux paramètres, le résultat suivant est obtenu : $k_2 = 0.0592$ et $h = 0.4232$ et une erreur quadratique $\varepsilon = 2.2325$. La réponse de ce modèle est comparée aux données sur la figure 3.26.

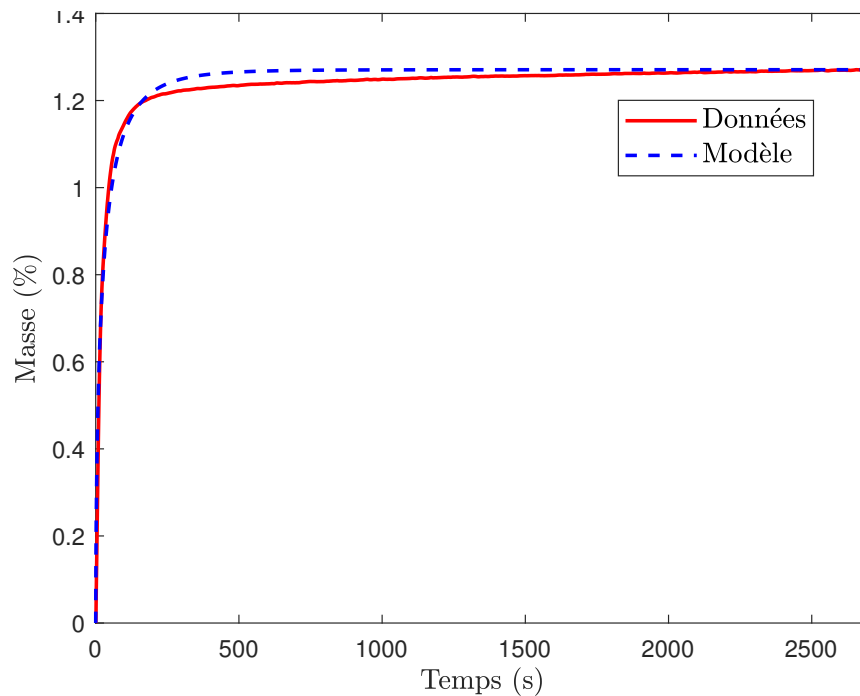


FIGURE 3.26: Comparaison entre les données d'adsorption de CO_2 (rouge) et le modèle de Lopes et al. (3.33) (bleu)

Modèle de Haerifar et Azizian

Le modèle de Haerifar et Azizian défini par la relation (3.36) est non stationnaire et présente une singularité en 0. Après optimisation, le résultat suivant est obtenu pour ses trois paramètres : $k_5 = 0.4715$, $h = 0.5582$, $c = 0.2829$ avec une erreur $\varepsilon = 1.3144$. La réponse de ce modèle est comparée aux données sur la figure 3.27.

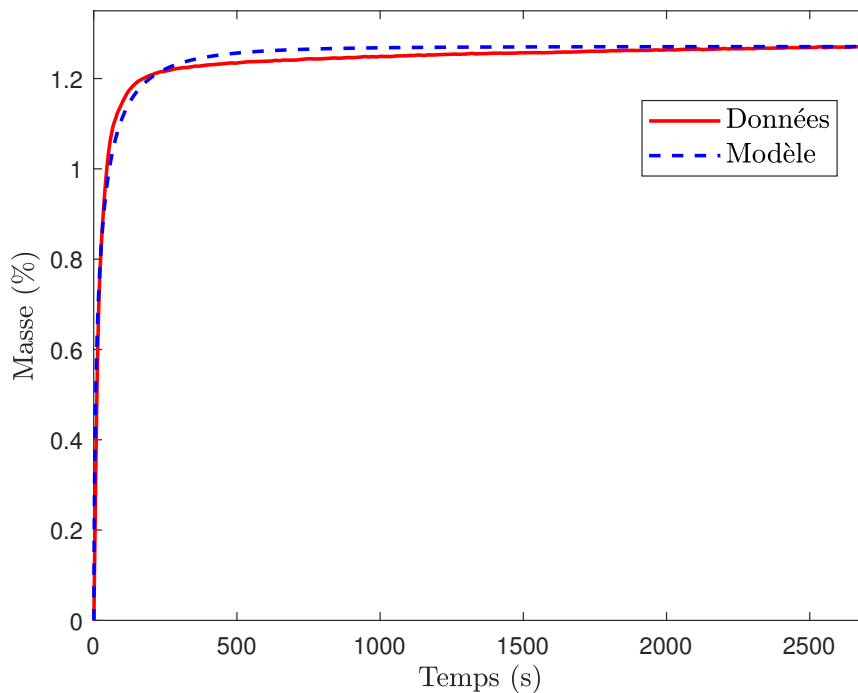


FIGURE 3.27: Comparaison entre les données d'adsorption de CO₂ (rouge) et le modèle de Haerifar et Azizian (3.36) (bleu)

Modèle de Brouers et Sotolongo-Costain

Le modèle de Brouers et Sotolongo-Costain [19] est un modèle non entier et non linéaire, défini par la relation (3.35). Une optimisation sur les paramètres α , k_4 et n conduit aux valeurs suivantes : $\alpha = 0.9154$, $k_4 = 0.0629$ et $n = 1.3808$ pour une erreur $\varepsilon = 0.2786$. La figure 3.28 montre la réponse du modèle en comparaison des données.

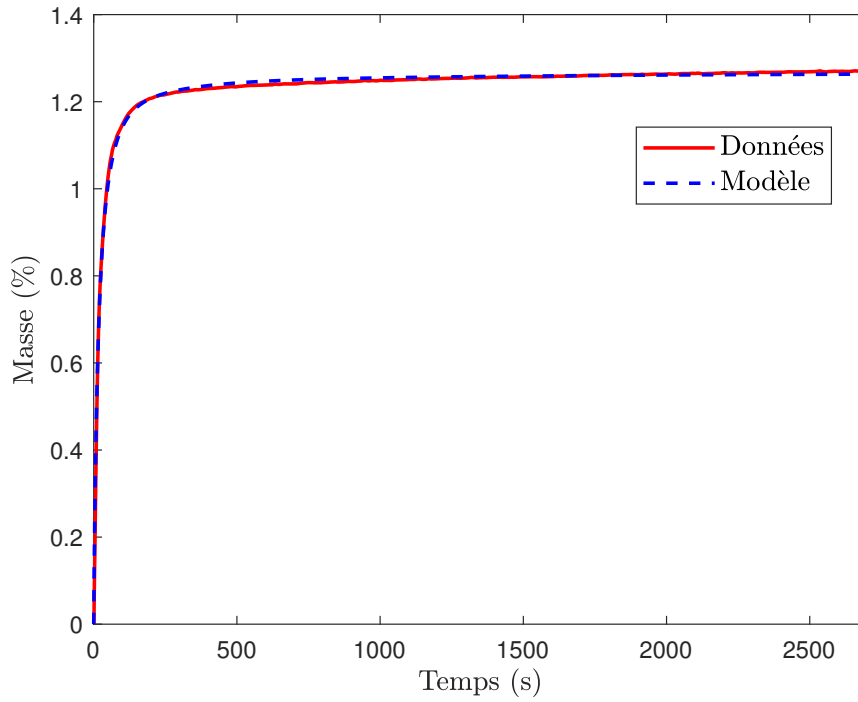


FIGURE 3.28: Comparaison entre les données d'adsorption de CO_2 (en rouge) et le modèle de Brouers et Sotolongo-Costain (3.35) (en bleu)

Modèle non entier

Outre les modèles précédents, une modélisation des données d'adsorption de CO_2 avec un modèle non entier linéaire est également réalisée dans ce paragraphe. Considérons le signal $y(t) = \frac{q_\infty - q(t)}{q_\infty}$, où $q_\infty = \lim_{t \rightarrow \infty} q(t)$, qui peut être vu comme la réponse d'un système à une fonction de Heaviside :

$$\forall t \in \mathbb{R}, \mathcal{H}(t) = \begin{cases} 0 & \text{si } t < 0, \\ 1 & \text{si } t \geq 0. \end{cases} \quad (3.38)$$

Après analyse des comportements asymptotiques de l'expérience d'adsorption, il est proposé de caractériser le système par la fonction de transfert non entière suivante :

$$H(t) = \frac{sK}{\left(\frac{s^\nu}{\omega_b} + 1\right) \left(\frac{s^{1-\nu}}{\omega_h} + 1\right)}. \quad (3.39)$$

La constante K est liée à la valeur initiale de $y(t)$. En effet, d'après le théorème de la valeur initiale, on a

$$y_0 = \lim_{t \rightarrow 0} y(t) = \lim_{s \rightarrow \infty} sY(s) = \lim_{s \rightarrow \infty} sH(s) \frac{1}{s} = \frac{K}{\omega_b \omega_h}. \quad (3.40)$$

Donc,

$$K = \frac{y_0}{\omega_b \omega_h}. \quad (3.41)$$

L'ordre non entier ν et les constantes ω_b et ω_h sont obtenus par minimisation du critère quadratique (3.37). Les paramètres suivants ont été obtenus : $\nu = 0.2$, $\omega_b = 3.6138 \times 10^{-5} \text{ rad.s}^{-1}$, et $\omega_h = 0.0463 \text{ rad.s}^{-1}$.

Dans la figure 3.29 est proposée une comparaison entre la réponse $q(t)$ reconstruite à partir du modèle non entier (3.39) et les données d'adsorption de CO_2 . L'erreur quadratique obtenu est

$$\varepsilon = 0.2446. \quad (3.42)$$

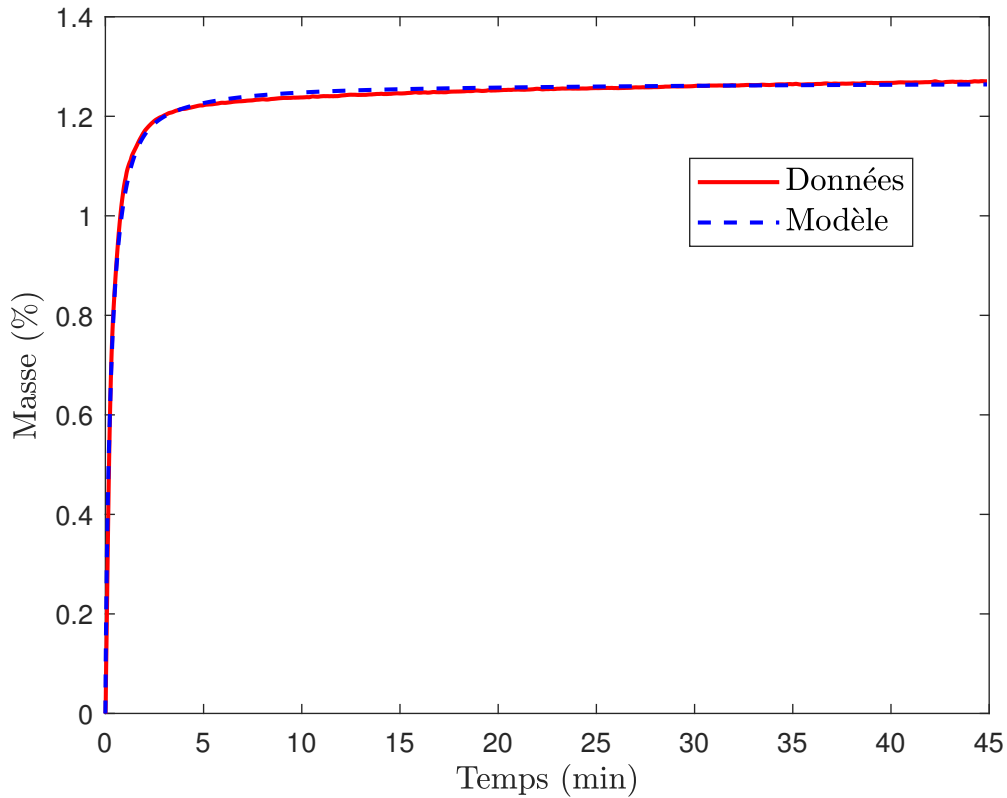


FIGURE 3.29: Comparaison entre la sortie du modèle non entier (en bleu) et les données d'adsorption (rouge)

Le phénomène d'adsorption présente un comportement non linéaire comme indiqué au paragraphe 3.3. Afin de prendre en compte ce comportement et d'améliorer la précision de modélisation par rapport aux modèles précédemment analysés, l'utilisation d'un modèle affine en l'entrée (introduit dans la partie 2.7) semble pertinente pour modéliser ce phénomène. C'est donc le sujet de la section qui suit.

3.4.2 Modèle affine en l'entrée

Modélisation de l'adsorption

Le phénomène d'adsorption est à présent modélisé à l'aide d'un modèle affine en l'entrée (2.165) de la forme :

$$\dot{y}(t) = f(y) \cdot u(t), \quad (3.43)$$

avec

$$f(y) = a_0 + a_1 y + a_2 y^2 + a_3 y^3 + a_4 y^4 + a_5 y^5. \quad (3.44)$$

Dans la relation (3.43), t correspond au temps physique et $u(t)$ est l'entrée du système (sans perte de généralité, on prendra $u(t) = 1$ particule par unité de temps). Les paramètres associés à la relation (3.44), obtenus par optimisation sont regroupés dans la table 3.9.

a_0	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5
0.0247	0.0075	-0.0557	0.01954	0.0115	-0.0033

TABLE 3.9: Paramètres de la fonction f de la relation (3.44)

Une comparaison des données et du modèle est proposée par la figure 3.30. L'erreur quadratique pour ce modèle est

$$\varepsilon = 0.2301. \quad (3.45)$$

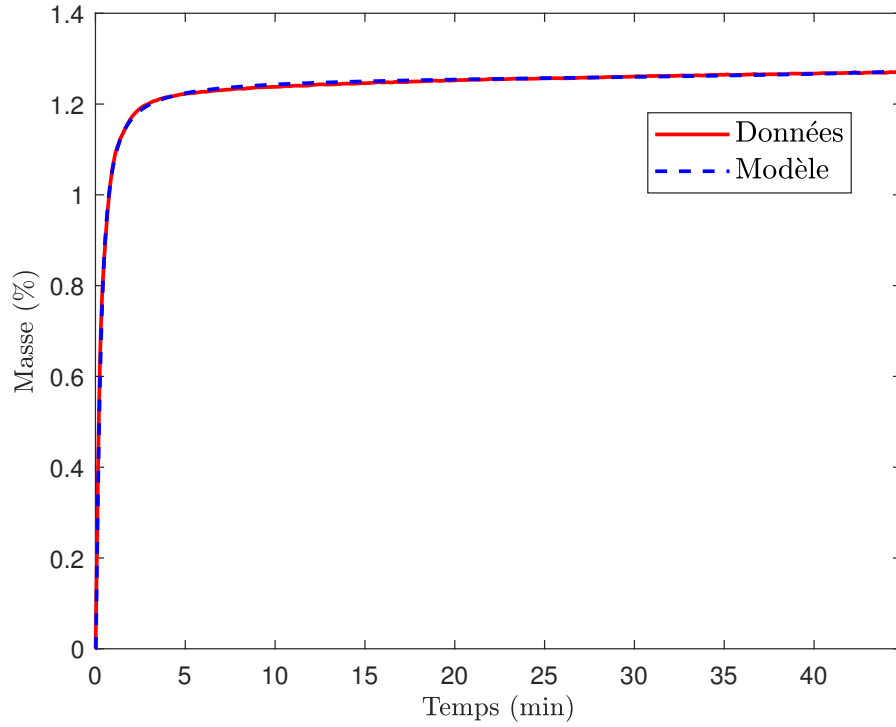


FIGURE 3.30: Comparaison de la partie adsorption des données et la réponse du modèle (3.43)

Modélisation de la désorption

Pour modéliser la partie désorption, comme suggéré dans [81], il est proposé d'utiliser un modèle du deuxième ordre, de réponse impulsionnelle

$$A_{d1}e^{-k_1t} + A_{d2}e^{-k_2t}. \quad (3.46)$$

Les paramètres de ce modèle sont obtenus par la minimisation du critère quadratique (3.37) qui donne les valeurs suivantes : $A_{d1} = 0.2342$, $A_{d2} = 1.039$, $k_1 = 0.0033$ et $k_2 = 0.0181$.

Une comparaison du modèle (3.46) avec les données de désorption est représentée sur la figure 3.31, après ajustement de l'origine temporelle. Avec ce modèle, l'erreur quadratique est $\varepsilon = 0.1515$.

Combinaison des modèles d'adsorption et désorption

Le modèle de désorption utilisé suggère qu'une partie des particules adsorbées se désorbe avec une constante de temps k_1 et l'autre partie avec une constante de temps k_2 . Pour créer un modèle global d'adsorption et de désorption, il est donc proposé de considérer deux ensembles de particules adsorbées et de scinder le modèle (3.43) en deux parties :

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = f_1(x_1)u(t) - k_1x_1 \\ \dot{x}_2 = f_2(x_2)u(t) - k_2x_2 \\ y = x_1 + x_2 \end{cases}, \quad (3.47)$$

avec f_1 et f_2 deux polynômes à reconstruire avec la connaissance de f .

En accord avec l'équation (3.46), soit $y_0 = y(t_0) = A_{d1} + A_{d2}$ la valeur à l'instant initial t_0 à laquelle le modèle doit vérifier, soit :

$$\begin{cases} x_1(t_0) = A_{d1} \\ x_2(t_0) = A_{d2} \end{cases}, \quad (3.48)$$

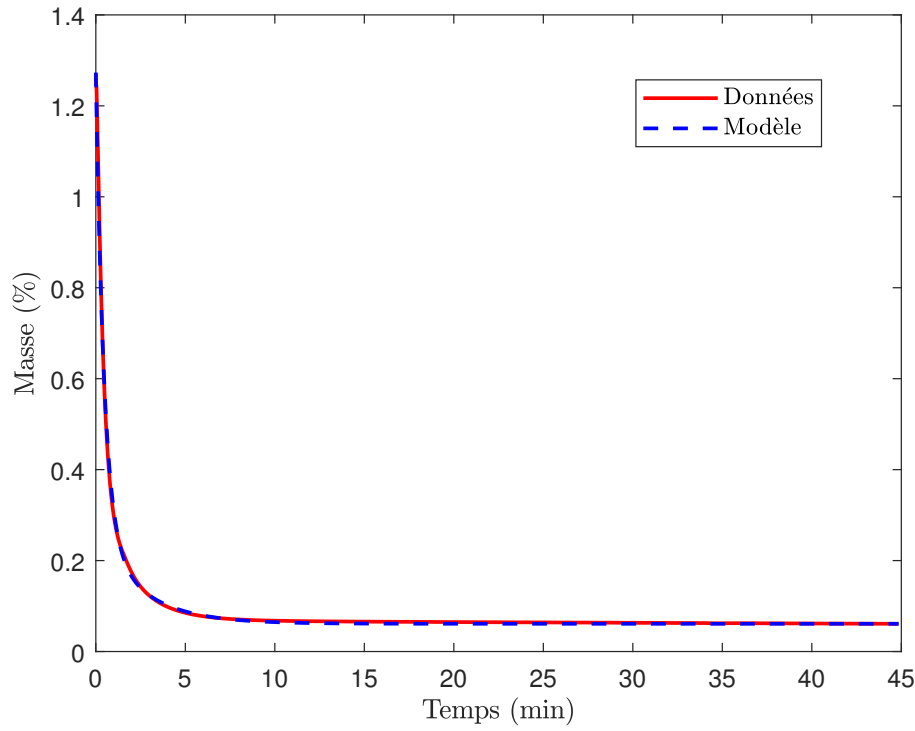


FIGURE 3.31: Comparaison de la partie désorption des données et de la réponse du modèle (3.46)

ce qui conduit à choisir

$$\begin{cases} x_1(t) = \frac{A_{d1}}{y_0} y(t) \\ x_2(t) = \frac{A_{d2}}{y_0} y(t), \end{cases} \quad (3.49)$$

dont la dérivée est

$$\begin{cases} \dot{x}_1(t) = \frac{A_{d1}}{y_0} \dot{y}(t) \\ \dot{x}_2(t) = \frac{A_{d2}}{y_0} \dot{y}(t) \end{cases}. \quad (3.50)$$

Comme $\dot{y}(t) = f(y)$ (où f est la fonction donnée par la relation (3.44) dans laquelle les paramètres associés sont donnés dans la table 3.9), l'équation (3.50) admet l'équivalence

$$\begin{cases} \dot{x}_1(t) = \frac{A_{d1}}{y_0} f(y) \\ \dot{x}_2(t) = \frac{A_{d2}}{y_0} f(y) \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \dot{x}_1(t) = \frac{A_{d1}}{y_0} f\left(\frac{x_1(t)y_0}{A_{d1}}\right) \\ \dot{x}_2(t) = \frac{A_{d2}}{y_0} f\left(\frac{x_2(t)y_0}{A_{d2}}\right) \end{cases}. \quad (3.51)$$

En ajoutant la partie désorption et l'entrée $u(t)$, le système précédent devient

$$\begin{cases} \dot{x}_1(t) = \frac{A_{d1}}{y_0} f_1\left(\frac{x_1(t)y_0}{A_{d1}}\right) u(t) - k_1 x_1 \\ \dot{x}_2(t) = \frac{A_{d2}}{y_0} f_2\left(\frac{x_2(t)y_0}{A_{d2}}\right) u(t) - k_2 x_2 \end{cases} \quad (3.52)$$

où $f_1(X) = a'_0 + a'_1 X + a_2 X^2 + a_3 X^3 + a_4 X^4 + a_5 X^5$ et $f_2(X) = a''_0 + a''_1 X + a_2 X^2 + a_3 X^3 + a_4 X^4 + a_5 X^5$ sont deux polynômes. Les paramètres a'_0 , a'_1 , a''_0 et a''_1 sont déduits de ceux de f (relations (3.53) et (3.55)) et les autres paramètres a_i sont les mêmes que ceux de f .

En effet, le terme de désorption impacte la valeur des paramètres de degré 1. Pour éviter cet impact sur l'adsorption, les paramètres a'_1 dans f_1 et a''_1 dans f_2 doivent vérifier :

$$a'_1 = a_1 + k_1 \quad \text{et} \quad a''_1 = a_1 + k_2. \quad (3.53)$$

Par ailleurs, la valeur finale des données n'est pas nulle (voir figure 3.31), le modèle (3.52) doit être modifié pour prendre en compte cette contrainte et devient :

$$\begin{cases} \dot{x}_1(t) = \frac{A_{d1}}{y_0} f_1\left(\frac{x_1(t)y_0}{A_{d1}}\right) u(t) - k_1(x_1 - y_f/2) \\ \dot{x}_2(t) = \frac{A_{d2}}{y_0} f_2\left(\frac{x_2(t)y_0}{A_{d2}}\right) u(t) - k_2(x_2 - y_f/2), \end{cases} \quad (3.54)$$

où y_f désigne la valeur de la masse de CO_2 à la fin de la désorption.

Ajouter y_f affecte les paramètres de degré 0 du modèle (3.52). Pour éviter cet impact sur l'adsorption, les paramètres a'_0 dans f_1 et a''_0 dans f_2 doivent vérifier :

$$a'_0 = a_0 - \frac{k_1 y_f}{2} \frac{y_0}{A_{d1}} \quad \text{et} \quad a''_0 = a_0 - \frac{k_2 y_f}{2} \frac{y_0}{A_{d2}}, \quad (3.55)$$

ce qui complète la paramétrisation du modèle (3.52).

Les paramètres obtenus finalement pour les fonctions f_1 et f_2 sont donnés dans la table 3.10.

a'_0	a''_0	a'_1	a''_1	a_2
0.0241	0.0239	0.0111	0.0279	-0.0557

a_3	a_4	a_5	k_1	k_2
0.0195	0.0115	-0.0033	0.0033	0.0181

TABLE 3.10: Paramètres des fonctions f_1 et f_2 du modèle (3.54)

Une comparaison des données et de la réponse du modèle (3.54) est proposée dans la figure 3.32. L'erreur quadratique obtenue est $C_7 = 2.1785 \times 10^{-5}$.

Afin d'améliorer encore le modèle, il est possible d'augmenter l'ordre du modèle qui caractérise la partie désorption (modèle (3.46)) et d'utiliser exactement la même méthodologie.

Récapitulatif des différents modèles pour la partie adsorption

Le tableau suivant propose la comparaison des différents modèles pour la partie adsorption du phénomène.

Modèle	Lagergren	Ho & Mckay	Lopes	H & A	BSC	Non-entier	Affine
Linéarité	L	NL	NL	NL	NL	L	NL
Stationnarité	S	S	NS	NS	S	S	S
Dimension État	1	1	1	1	∞	∞	1
Nb paramètres	1	1	2	3	3	4	6
Erreur	4.7766	0.5864	2.2325	1.3144	0.2786	0.2446	0.2301

Ce tableau montre qu'en termes d'erreurs les meilleurs modèles sont les deux modèles non entiers et le modèle non linéaire affine en l'entrée. Le modèle non linéaire est tout de même un peu plus précis et surtout, il permet d'éviter certaines difficultés liées à l'utilisation de modèles non entiers, notamment en termes d'ordre du système et donc d'initialisation (un seul état et donc une seule condition initiale, la masse adsorbée). L'état du modèle non linéaire a également un sens physique : la surface couverte. Par ailleurs le modèle non-entier ne prend pas en compte le comportement non linéaire du phénomène : si le flux de particules est doublé, la valeur finale de la surface couverte n'est pas doublée.

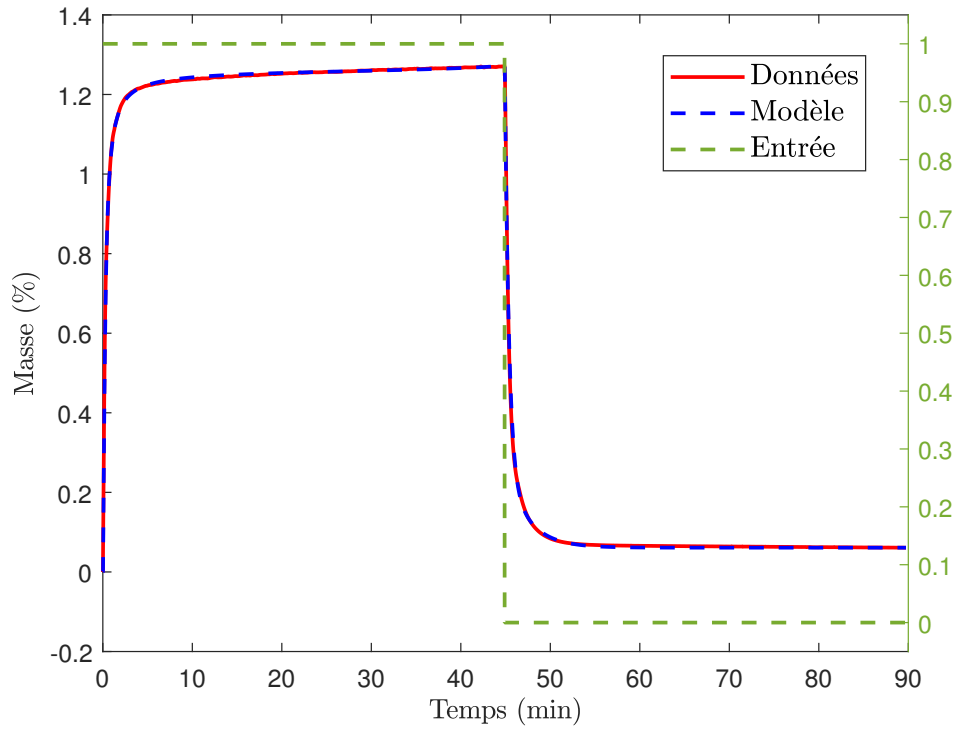


FIGURE 3.32: Comparaison des données d'adsorption/désorption de CO_2 (en bleu) avec la réponse du modèle (en rouge).

3.5 Conclusion

Ce chapitre s'est focalisé sur le phénomène d'adsorption. Ce phénomène est exploité dans différentes applications, comme dans les capteur à ondes de Love ou pour la capture de CO_2 , ou encore pour la dépollution des eaux [17]. Ce chapitre met notamment en évidence sur la base du phénomène idéalisé qu'est l'ASA (Adsorption Sequential Aléatoire ou ASA pour Random Sequential Adsorption) que le phénomène d'adsorption a un comportement de type puissance sur les temps longs. Il met également en évidence le comportement non linéaire de ce phénomène et la pertinence des modèles non linéaires affines en la commande pour capter les comportements de type puissance. L'efficacité de tels modèles a été évaluée sur le ASA en 2D, mais également sur des dimensions non entières de diverses surfaces fractales. Elle a également été évaluée sur des mesures réelles impliquant des phénomènes d'adsorption et désorption de CO_2 sur des surfaces sensibles. Une comparaison a été faite entre les modèles qui ont été proposés dans la littérature. Cette comparaison a révélé la précision des modèles non linéaires affines en la commande et des modèles non entiers. Vis-à-vis des modèles non entiers notamment, l'approche de modélisation qui a été proposée permet une précision et une parcimonie semblable, mais évite de travailler avec des modèles dont l'état est de dimension infinie. Avec les modèles non linéaires affine en la commande, l'état a un sens physique (densité de surface couverte dans le cas de l'ASA ou masse adsorbée dans le cas du CO_2) et son initialisation est simple et directement en lien avec la quantité d'espèce adsorbée ou désorbée.

Le chapitre suivant est consacré à un autre travail de modélisation de comportement de type puissance avec des outils autres que des modèles non entiers. Il porte sur la modélisation du stockage d'hydrogène dans des hydrures métalliques au moyen d'équations de diffusion à paramètres variables.

Chapitre 4

Modélisation à l'aide d'équations de diffusion à paramètres variables de phénomènes d'absorption

4.1	Introduction	100
4.2	Mise en place et étude d'un banc d'essai de stockage d'hydrogène	100
4.2.1	Mise en place du banc d'essai de stockage d'hydrogène	100
4.2.2	Mise en évidence d'un comportement dynamique de type puissance	102
4.2.3	Modèle non-entier	102
4.2.4	Modèle de diffusion à coefficients spatialement variables	104
4.3	Jeu de données d'absorption d'hydrogène issu de la littérature	107
4.3.1	Description du protocole expérimental et mise en évidence d'un comportement de type puissance	107
4.3.2	Modèle non entier	108
4.3.3	Modèle de diffusion avec isotherme	109
4.4	Conclusion	111

4.1 Introduction

Dans ce chapitre en terme d'applications des équations de diffusion à paramètres variables nous nous intéressons à la modélisation d'un phénomène d'absorption, présent en particulier dans le stockage d'agents dans un matériaux poreux, en l'occurrence de l'hydrogène dans un matériaux métallique poreux. Deux jeux de données sont étudiés. Le premier provient d'un banc d'essai mis en place pour ce travail et concerne le stockage d'hydrogène dans une bouteille composée d'hydrure métallique et le deuxième provient d'une équipe de l'Université Centrale Sud de Hunan (Chine) et de l'Université de l'Utah (États-Unis) [68].

Dans un premier temps, le banc d'essai ayant servi à la génération du premier jeu de données est décrit, puis après avoir mis en évidence le comportement de type puissance du phénomène, une modélisation à l'aide d'un modèle basé sur une équation de diffusion à coefficients spatialement variables est proposée (modèle issu de l'étude faite dans la partie 2.6. L'efficacité de ce modèle est comparée à un modèle non-entier.

Dans un second temps, le comportement de type puissance du jeu de données issu de la littérature est mis en évidence puis une modélisation à l'aide d'un modèle basé sur une équation de diffusion est proposé. Ce modèle met en jeu un coefficient provenant d'un isotherme d'adsorption pouvant décrire la fixation des particules dans les pores du matériaux.

La compacité et la précision des modèles dans ce chapitre est discutée en prenant pour référence un modèle non entier.

4.2 Mise en place et étude d'un banc d'essai de stockage d'hydrogène

Afin de pouvoir étudier le phénomène d'absorption d'hydrogène, un banc d'essai a été mis en place dans le cadre de cette thèse. Dans les parties qui suivent, ce banc d'essai est d'abord décrit, le comportement de type puissance des mesures obtenues est ensuite mis en évidence et des modèles sont enfin proposés.

4.2.1 Mise en place du banc d'essai de stockage d'hydrogène

Le banc d'essai de la figure 4.1, mis en place pour générer des données de stockage d'hydrogène, est construit autour d'un réservoir, dont le débit entrant et sortant est commandé. Afin de simuler des phases de stockage et déstockage, le vérin (f) retire l'hydrogène du réservoir (b) puis le renvoie. Un pont de Graetz pneumatique (e) permet de faire circuler l'hydrogène dans un seul sens lorsqu'il est retiré et renvoyé dans le réservoir. Ceci est imposé par le capteur de débit (a). La pression est mesurée à l'extérieur du réservoir par le capteur (c). Tout cela est traité numériquement via le système électronique (d).

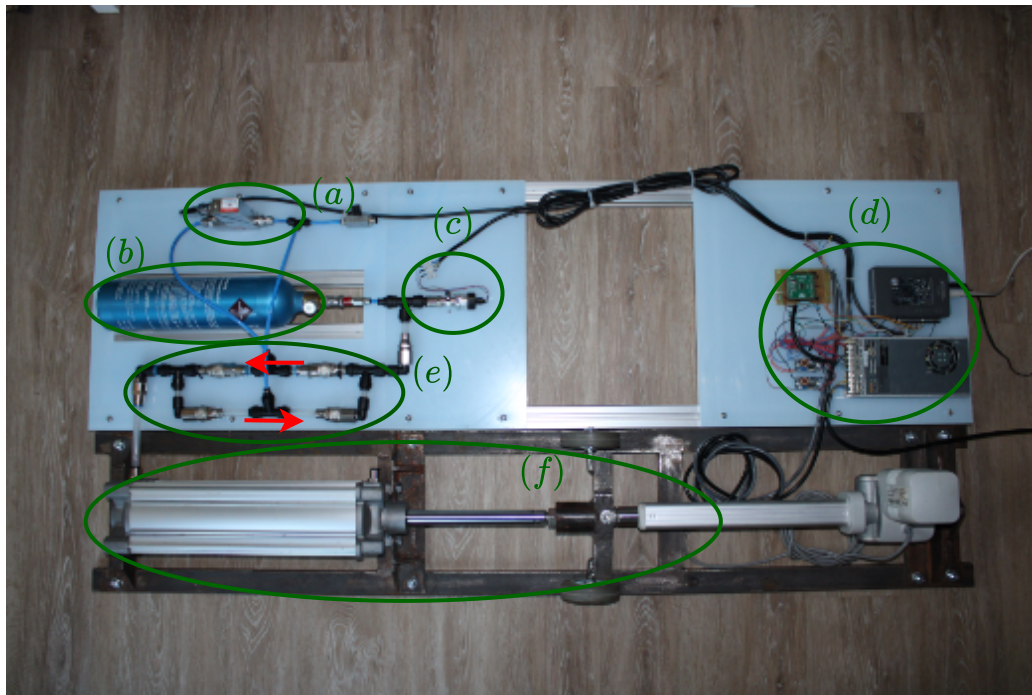


FIGURE 4.1: Photo du banc d'essai pour la génération de données de stockage d'hydrogène

Une coupe d'un réservoir servant à contenir de l'hydrogène est illustrée dans la figure 4.3. Ce type de réservoir permet de stocker l'hydrogène sous forme solide. Son intérêt est de permettre de stocker une quantité d'hydrogène sensiblement plus importante (jusqu'à $200 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ [34]) qu'avec les méthodes de stockage plus répandues que sont le stockage liquide (jusqu'à $72 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$) ou gazeux (jusqu'à $62 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$) [33]. Ceci est rendu possible par la capacité de certains composés métalliques comme le magnésium d'absorber de manière réversible de l'hydrogène lorsqu'ils sont soumis à une certaine pression, comme illustré sur la figure 4.2.

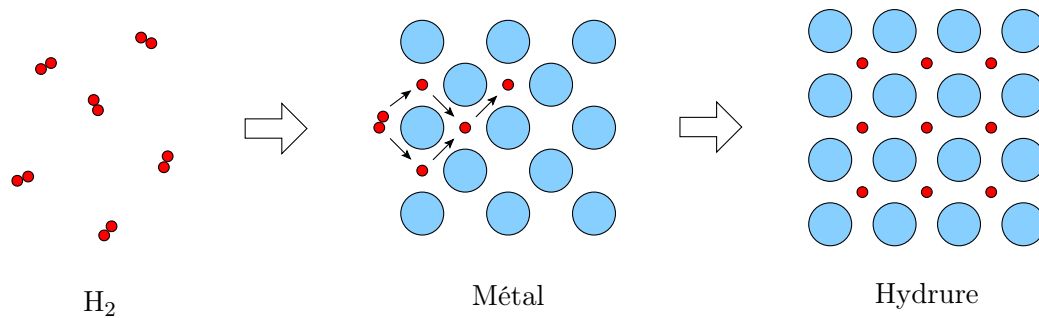


FIGURE 4.2: Illustration de la diffusion d'hydrogène dans du métal et formation d'hydrure



FIGURE 4.3: Vue en coupe des réservoirs utilisés laissant voir leur structure interne

4.2.2 Mise en évidence d'un comportement dynamique de type puissance

Un débit $Q(t)$ (en l/min) est imposé en entrée du réservoir afin de générer un stockage/déstockage d'hydrogène. La pression $P(t)$ (en bar) qui en résulte est mesurée à l'entrée du réservoir. La figure 4.4 montre un exemple de débit (à gauche) et de pression (à droite) obtenus avec le banc d'essai.

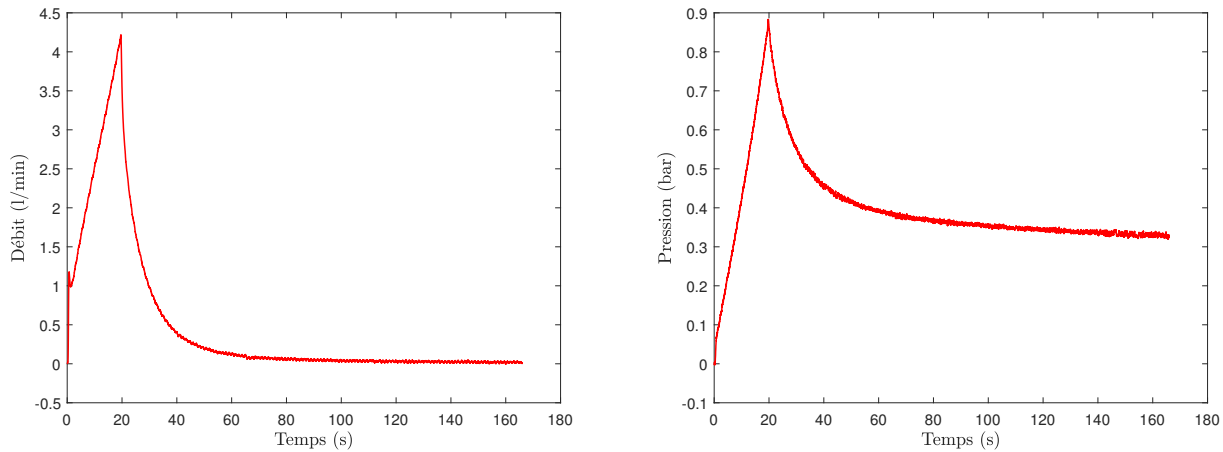


FIGURE 4.4: Débit d'hydrogène injecté dans le réservoir (à gauche) et pression d'hydrogène mesurée à l'entrée du réservoir (à droite)

Ces données présentent un comportement de type puissance. En effet, cela est mis en évidence par le tracé du logarithme du débit et de la pression en fonction du logarithme du temps dans la figure 4.5. Le débit et la pression ont une partie linéaire d'ordre respectivement $\nu_{\text{débit}} \approx 0.67$ et $\nu_{\text{pression}} \approx 0.93$. L'ordre du système est alors $\nu = \nu_{\text{pression}} - \nu_{\text{débit}} \approx 0.26$.

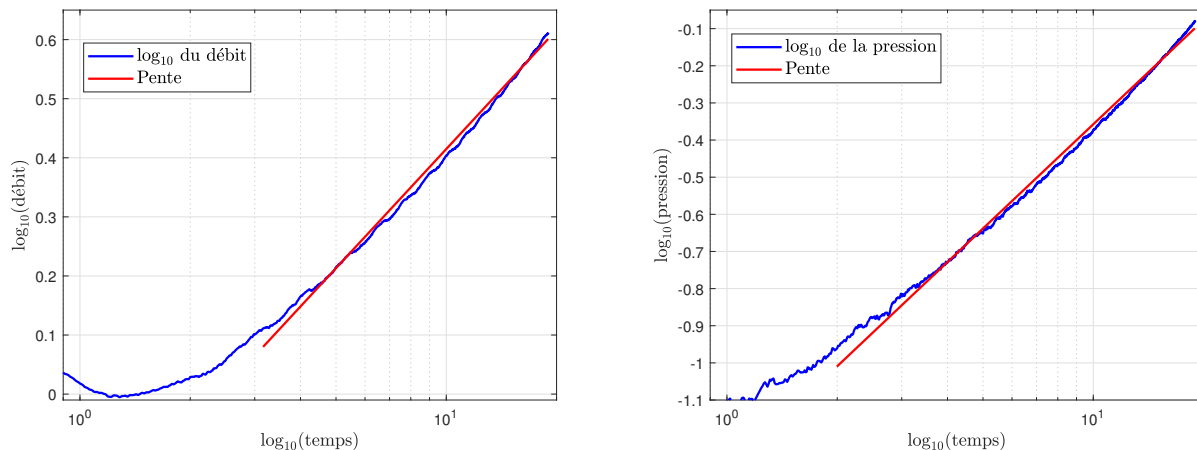


FIGURE 4.5: Mise en évidence du comportement de type puissance du débit (à gauche) et de la pression (à droite)

4.2.3 Modèle non-entier

On cherche dans un premier temps à modéliser le système liant le débit (en entrée) à la pression (en sortie) par un modèle non entier. Pour cela, on considère la fonction de transfert

non entière suivante :

$$H(s) = K \frac{\left(\frac{s}{\omega_{bp}} + 1\right)^{\frac{s}{\omega_{hp}} + 1}}{\left(\frac{s}{\omega_b} + 1\right)^{\nu} \frac{s^2}{\omega_h} + s} \quad (4.1)$$

La pression d'hydrogène au bord de la bouteille est vue comme la réponse au débit de la figure 4.4 de la fonction de transfert (4.1). Une optimisation sur les paramètres K , ν , ω_b , ω_{bp} , ω_{hp} et ω_h est effectuée par minimisation du critère quadratique

$$\varepsilon = \sum_i (P(i) - P_{NE}(i))^2, \quad (4.2)$$

où $P(t)$ désigne les données de pression d'hydrogène et $P_{NE}(t)$ désigne la réponse du modèle non entier de fonction de transfert H au débit de la figure 4.4. Les paramètres de la table 4.1 sont obtenus et conduisent à une erreur $\varepsilon = 2.570 \times 10^{-1}$. Une comparaison entre $P(t)$ et $P_{NE}(t)$ est proposée sur la figure 4.6.

K	ν	ω_b	ω_{bp}	ω_{hp}	ω_h
3.7867×10^{-2}	0.5344	7.1317×10^{-3}	4.1691×10^1	9.6488×10^{-2}	2.1186×10^{-1}

TABLE 4.1: Paramètres du modèle (4.1) après optimisation

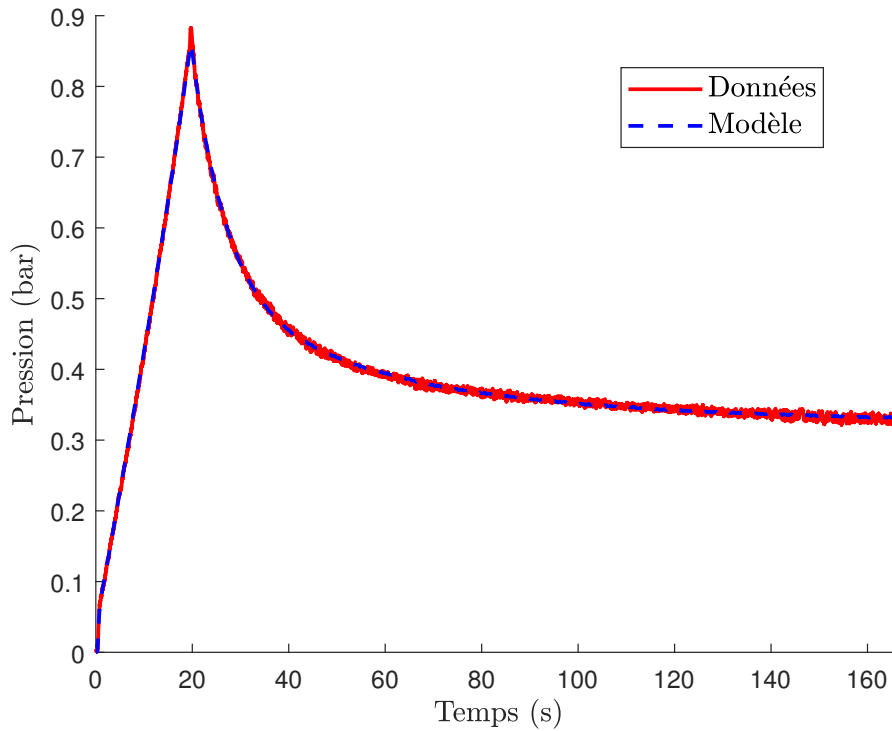
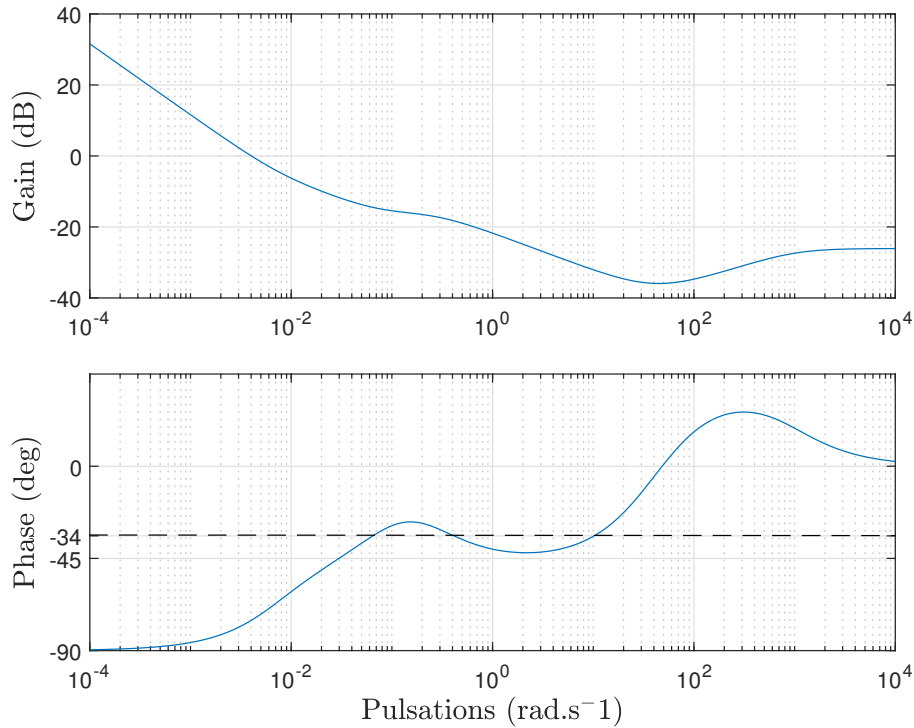


FIGURE 4.6: Comparaison entre la pression mesurée au bord de la bouteille et la réponse du modèle de fonction de transfert H (éq. (4.1))

Avec les paramètres de la table 4.1, le diagramme de Bode de la fonction de transfert $H(s)$ (relation (4.1)) est représenté dans la figure 4.7. La phase de cette figure présente une gamme de fréquences sur laquelle la phase est bloquée autour de la valeur -34 , ce qui indique un comportement de type puissance d'ordre 0.38 (car $-90 \times 0.38 = -34$). Cet ordre est proche de celui qui avait été évalué sur les réponses temporelles de la figure 4.5, $\nu \approx 0.26$.

FIGURE 4.7: Diagramme de Bode de la fonction de transfert $H(s)$ (relation (4.1))

4.2.4 Modèle de diffusion à coefficients spatialement variables

Il a été montré dans la partie 2.6 qu'une équation de diffusion à coefficients spatialement variables peut générer des comportements de type puissance et peut-être discrétisée sous la forme d'un réseau RC de type Cauer. Étant donné le phénomène physique mis en jeu et la nature du réservoir, on considère ici un modèle de ce type. Le réservoir est divisé en deux parties :

- l'entrée du réservoir, constituée du robinet et suivi d'une cavité, entourée en rouge dans la figure 4.8 ;
- l'hydrure métallique dans lequel l'hydrogène diffuse et se stocke, entourée en vert dans la figure 4.8.

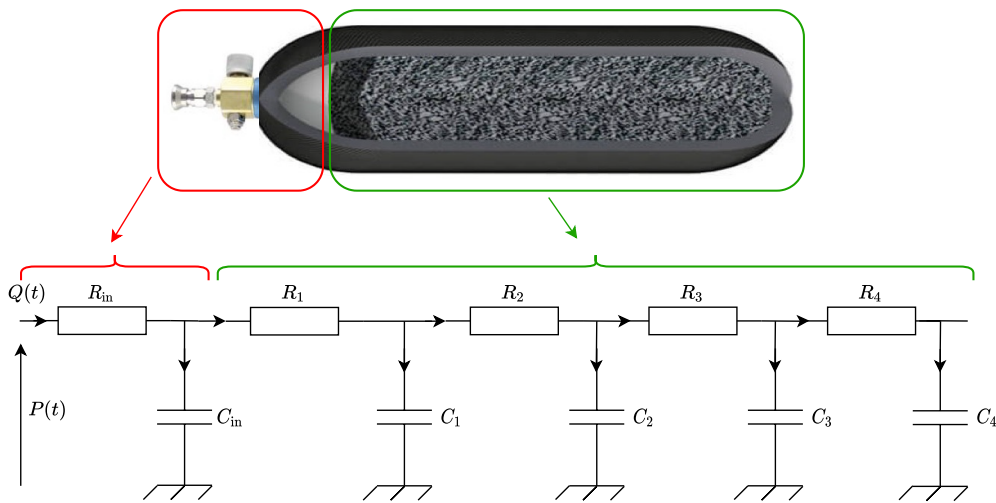


FIGURE 4.8: Réseau RC de type Cauer modélisant la diffusion de l'hydrogène

Ainsi, le premier circuit RC de la figure 4.8, composé de la résistance R_{in} et du condensateur

C_{in} , modélise l'entrée du réservoir, à savoir le robinet et la cavité située juste après. Les autres résistances R_i , $i = 1 \dots 4$ et condensateurs C_i , $i = 1 \dots 4$ correspondent à l'intérieur du réservoir constitué du matériau dans lequel l'hydrogène va se stocker. Ces dernières résistances et capacités sont liées les unes aux autres de la manière qui suit :

$$\frac{R_{k+1}}{R_k} = \left(\frac{k+1}{k} \right)^{\lambda_R}, \quad \lambda_R \in \mathbb{R}_+ \quad \text{et} \quad \frac{C_{k+1}}{C_k} = \left(\frac{k+1}{k} \right)^{-\lambda_C}, \quad \lambda_C \in \mathbb{R}_+. \quad (4.3)$$

Le réseau RC de la figure 4.8 est alors une discrétisation de l'équation de diffusion suivante :

$$\frac{\partial P(z, t)}{\partial t} = \gamma(z) \frac{\partial}{\partial z} \left(\beta(z) \frac{\partial P(z, t)}{\partial z} \right), \quad (4.4)$$

où $\gamma(z)$ et $\beta(z)$ seront déterminées dans la suite.

La fonction de transfert suivante du modèle de la figure 4.8 est alors déduite.

$$H(s) = \frac{P(s)}{Q(s)} = \frac{\frac{1}{R_{\text{in}}}}{1 + \frac{\frac{1}{sC_{\text{in}}R_{\text{in}}}}{1 + \frac{\frac{1}{sC_{\text{in}}R_1}}{1 + \frac{1}{sC_1R_1}}}}. \quad (4.5)$$

La pression $P_{\text{RC}}(t)$ du modèle décrit par le réseau de la figure 4.8 est la réponse du modèle de fonction de transfert H au débit $Q(t)$. Les paramètres R_{in} , R_1 , C_{in} , C_1 , λ_R et λ_C de la table 4.2 sont obtenus par optimisation visant à minimiser le critère ε de la relation (4.2), résultant en une erreur $\varepsilon = 2.3809 \times 10^{-1}$.

R_{in}	R_1	C_{in}	C_1	λ_R	λ_C
3.2590×10^{-2}	1.360×10^{-1}	1.4957×10^1	1.4371×10^2	3.0189	2.1325

TABLE 4.2: Paramètres du modèle (4.5) après optimisation

Avec les paramètres de la table 4.2, le diagramme de Bode de la fonction de transfert $H(s)$ (relation (4.5)) est représenté dans la figure 4.10. La phase de cette figure présente une gamme de fréquences sur laquelle la phase est bloquée autour de la valeur -34° , ce qui indique un comportement de type puissance d'ordre 0.38 (car $-90^\circ \times 0.38 = -34^\circ$). Cet ordre est proche de celui qui avait été évalué sur les réponses temporelles de la figure 4.5, $\nu \approx 0.26$.

Avec une telle approche de modélisation, le comportement de type puissance du système est capturé et il est possible d'associer un sens physique aux paramètres obtenus. Ainsi, considérons que la partie du réservoir contenant l'hydrure métallique (encadrée en vert dans la figure 4.8) est de longueur z_L . La valeur d'une épaisseur de cette partie est alors $\Delta z = z_L/4$. Les valeurs des paramètres R_0 et C_0 dans la relation (2.142) sont alors, d'après la relation (2.141), données par :

$$R_0 = \frac{R_1}{\Delta z^{\lambda_R}} = \frac{R_1}{(z_L/4)^{\lambda_R}} \quad \text{et} \quad C_0 = \frac{C_1}{\Delta z^{-\lambda_C}} = \frac{C_1}{(z_L/4)^{-\lambda_C}}, \quad (4.6)$$

et on a

$$R(z) = \frac{R_1}{(z_L/4)^{\lambda_R}} z^{\lambda_R} \quad \text{et} \quad C(z) = \frac{C_1}{(z_L/4)^{-\lambda_C}} z^{-\lambda_C}, \quad z \in [1, z_L]. \quad (4.7)$$

La partie du réservoir qui contient l'hydrure métallique peut alors être modélisée par l'équation (4.9) dans laquelle, les coefficient spatialement variables $\beta(z)$ et $\gamma(z)$ sont respectivement définis par :

$$\beta(z) = \frac{-1}{R(z)} = \frac{-(z_L/4)^{\lambda_R}}{R_1} z^{-\lambda_R} \quad \text{et} \quad \gamma(z) = \frac{-1}{C(z)} = \frac{-(z_L/4)^{-\lambda_C}}{C_1} z^{\lambda_C}, \quad z \in [1, z_L]. \quad (4.8)$$

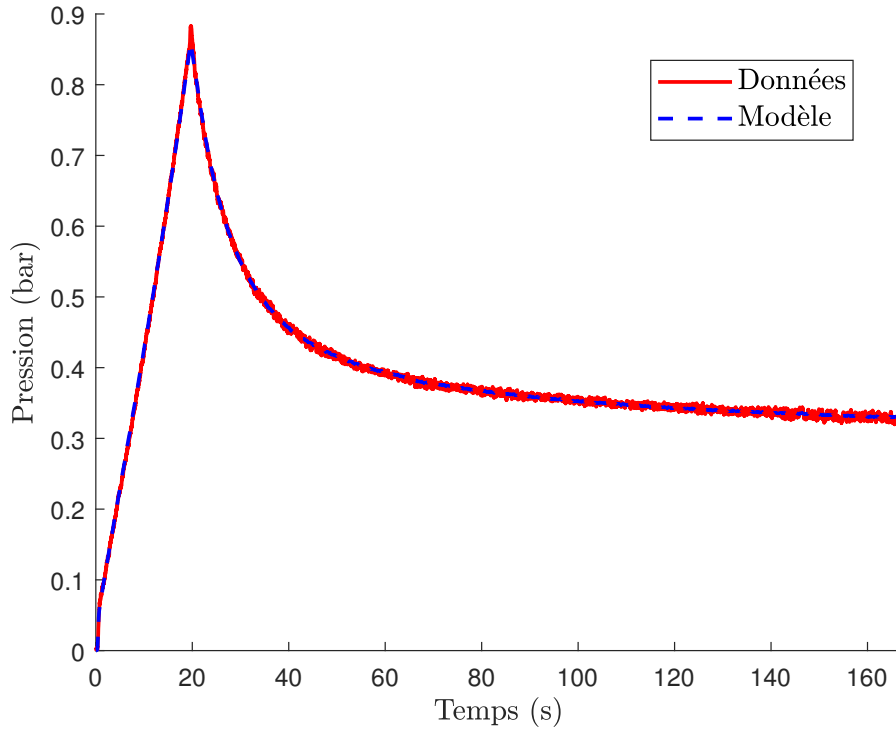
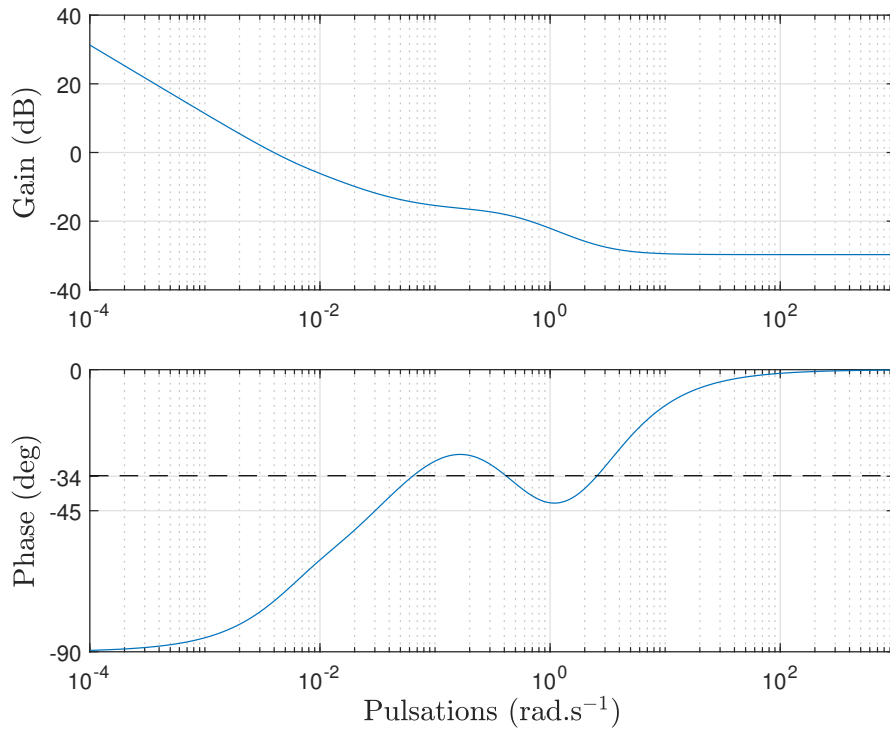


FIGURE 4.9: Comparaison entre le modèle de la figure 4.8 et les mesures de stockage d'hydrogène

FIGURE 4.10: Diagramme de Bode de la fonction de transfert $H(s)$ (relation (4.5))

Il est possible de modifier le domaine de définition de l'équation (4.9) par le changement de variable $\xi = z - 1$. L'équation (4.9) devient alors :

$$\frac{\partial P'(\xi, t)}{\partial t} = \gamma'(\xi) \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\beta'(\xi) \frac{\partial P'(z, t)}{\partial \xi} \right), \quad (4.9)$$

avec $\beta'(\xi) = \beta(\xi - 1)$, $\gamma'(\xi) = \gamma(\xi - 1)$ et $P'(\xi, t) = P(\xi - 1, t)$.

L'initialisation d'un tel modèle consiste alors à définir $P'(\xi, 0)$. Ici, cela consiste alors en la définition d'un profil de pression dans la partie du réservoir composée de l'hydruure métallique sur un domaine spatial fini.

4.3 Jeu de données d'absorption d'hydrogène issu de la littérature

4.3.1 Description du protocole expérimental et mise en évidence d'un comportement de type puissance

Dans [68], pour obtenir le second jeu de mesures analysé dans ce chapitre, un volume d'environ 0.5 ml d'acétone est ajouté à une masse d'environ 0.2g de $\text{MgH}_2 - 5\%\text{TiMn}_2$ puis exposé à l'air libre pendant une durée de 1500 minutes. Après cette exposition à l'air, ce mélange protégé par le solvant est séché sous vide afin de pomper le solvant. Le $\text{MgH}_2 - 5\%\text{TiMn}_2$ est ensuite stocké dans une boîte remplie d'argon en vue de caractériser la quantité d'hydrogène potentiellement absorbée. La cinétique d'hydrogénation des échantillons a été ensuite analysée sous 1 bar d'hydrogène à une température de 100°C (figure 5(c) de [68]). Le pourcentage d' H_2 absorbé est tracé en fonction du temps dans la figure 4.11.

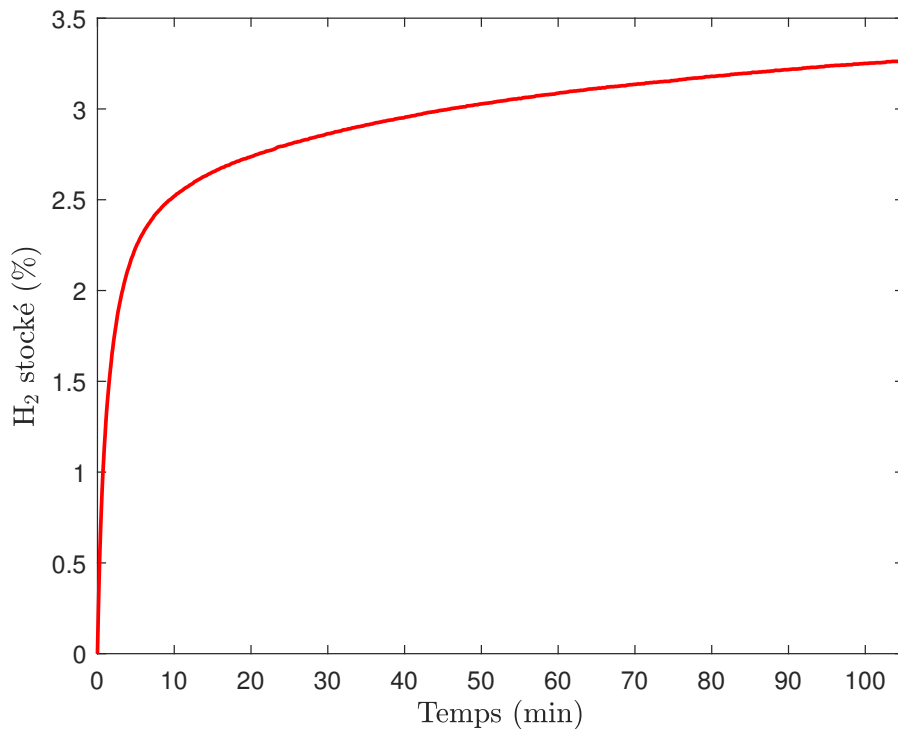


FIGURE 4.11: *Quantité d'hydrogène absorbée après 104 minutes*

La quantité d' H_2 absorbée a un comportement sur les temps longs de type puissance d'ordre $\alpha \approx 0.107$ comme le tracé de la figure 4.12 le montre : la courbe bleue est le logarithme en base 10 de la quantité d' H_2 absorbée en fonction du logarithme en base 10 du temps. Sur les temps longs, le segment rouge a une pente d'environ 0.107.

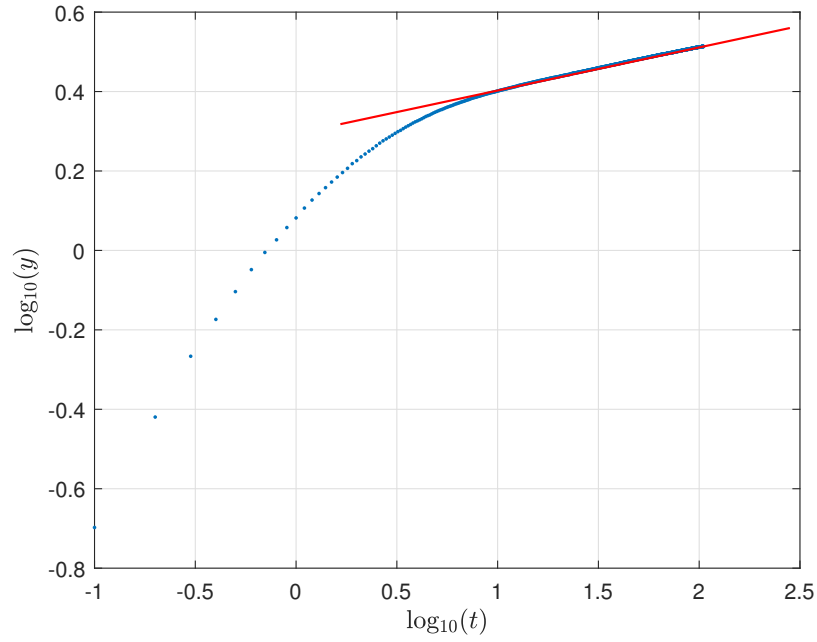


FIGURE 4.12: Logarithme décimal de la quantité d'hydrogène stockée (notée y) en fonction du logarithme décimal du temps

Une première modélisation de ce phénomène est faite à l'aide d'un modèle non entier puis, un modèle diffusif sera proposé.

4.3.2 Modèle non entier

La cinétique de la figure 4.11 peut être vue comme une réponse à un échelon (la pression de H_2 de 1 bar de l'enceinte dans laquelle se fait la réaction). Pour modéliser cette cinétique, on considère la fonction de transfert non entière suivante :

$$H(s) = K s^{-\nu} \frac{a_0 s + 1}{a_1 s^2 + a_2 s + 1}. \quad (4.10)$$

Une optimisation sur les paramètres K , ν , $a_{i,i=0\dots 2}$ de $H(s)$ de la relation (4.10) donne les valeurs de la table 4.3. Cette optimisation vise à réduire l'erreur quadratique entre les données et la réponse à un échelon de la fonction de transfert (4.10). Avec les paramètres de la table 4.3, cette erreur est $\varepsilon = 2.6048 \times 10^{-2}$.

La réponse de ce modèle est comparée aux données dans la figure 4.13.

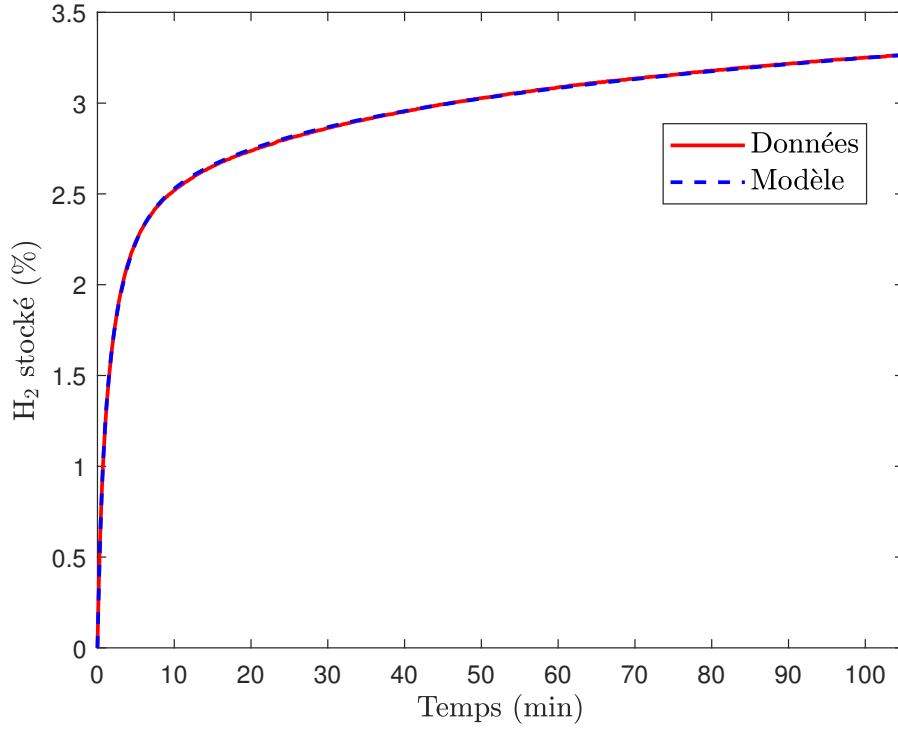


FIGURE 4.13: Comparaison entre les données et la réponse du modèle non-entier en fonction du temps

a_0	a_1	a_2	ν	K
1.2939	0.9671	2.5519	0.1009	1.9434

TABLE 4.3: Paramètres du modèle (4.10)

4.3.3 Modèle de diffusion avec isotherme

En s'inspirant des modèles proposés dans la littérature [20, 24, 82], on considère un problème en dimension 1, dans lequel l'hydrogène diffuse le long d'une barre et se stocke le long de celle-ci. On peut voir ce phénomène de diffusion de manière discrète sous forme de circuit de type Cauer, comme cela est illustré dans la figure 4.14. Le débit sortant de chaque nœud (flèches bleues) représente l'hydrogène stocké par réaction dans la partie supérieure et par compression dans la partie inférieure. La quantité totale stockée est donc la somme sur le temps des ces débits. Partant de cette forme discrète, on va à présent déduire une représentation continue. Pour cela, on pose $q(x, t) = \frac{1}{R} \frac{\partial P(x, t)}{\partial x}$, où x est la variable spatiale, q le débit et P la pression. On s'intéresse dans premier temps à la partie de l'hydrogène qui réagit avec le magnésium (partie supérieure du circuit). Il est proposé ici que cette réaction soit décrite par l'isotherme suivant qui donne le volume d'hydrogène absorbé en fonction de la pression P [112, 71] :

$$V(x, t) = \frac{V_m K P(x, t)^n}{1 + K P(x, t)^n}. \quad (4.11)$$

L'hydrogène stocké le long du matériau par réaction (absorption), fait apparaître le gradient de débit suivant :

$$\frac{\partial q_{\text{stock}}(x, t)}{\partial x} = \frac{dV}{dt} = \frac{V_m n K P(x, t)^{n-1}}{(1 + K P(x, t)^n)^2} \frac{\partial P(x, t)}{\partial t}. \quad (4.12)$$

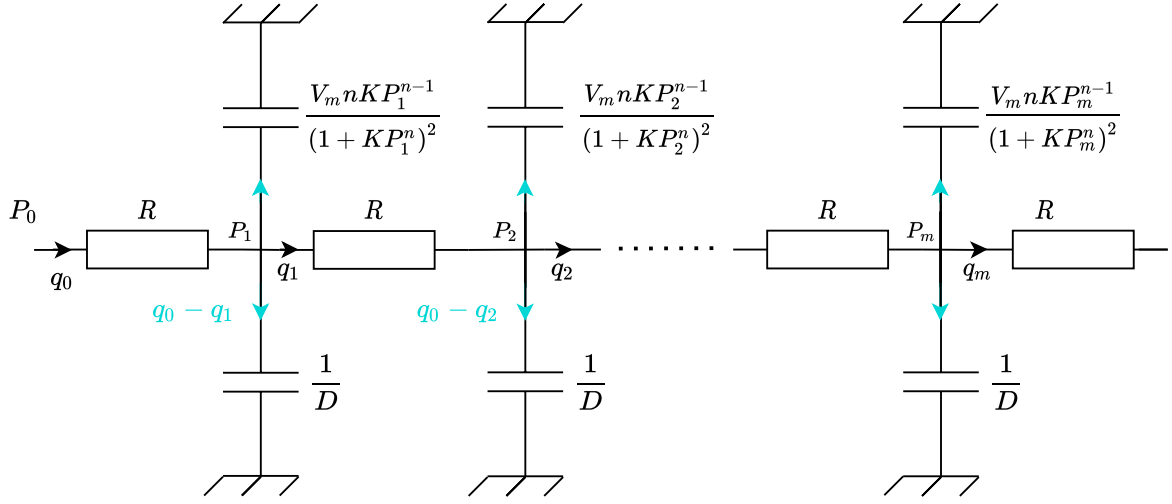


FIGURE 4.14: Circuit modélisant la diffusion d'hydrogène

En tenant compte de la part d'hydrogène stocké par débit de compressibilité (partie du bas du circuit de la figure 4.14) le gradient de débit total est défini par

$$\frac{\partial q(x, t)}{\partial x} = \frac{1}{D} \frac{\partial P(x, t)}{\partial t} + \frac{V_m n K P(x, t)^{n-1}}{(1 + K P(x, t)^n)^2} \frac{\partial P(x, t)}{\partial t}. \quad (4.13)$$

En prenant en compte les pertes de charge le long du matériau (résistance), le phénomène analysé est donc caractérisé par l'équation de diffusion à coefficient variable suivante

$$\frac{1}{R} \frac{\partial^2 P}{\partial x^2} = \left(\frac{1}{D} + \frac{V_m n K P(x, t)^{n-1}}{(1 + K P(x, t)^n)^2} \right) \frac{\partial P(x, t)}{\partial t}, \quad (4.14)$$

avec la condition initiale

$$P(x, 0) = 0, \quad \forall x \geq 0, \quad (4.15)$$

et les conditions aux bords :

$$\begin{cases} P(0, t) = 1, \forall t > 0, \\ \frac{\partial P(1, t)}{\partial t} = 0, \forall t > 0. \end{cases} \quad (4.16)$$

Sans perte de généralité, on suppose que le système considéré est de dimension 1 avec $x \in [0, 1]$. L'hydrogène stocké dans le matériau est donc défini par la relation :

$$V(t) = \int_0^1 D P(x, t) + \frac{V_m K P(x, t)^n}{1 + K P(x, t)^n} dx. \quad (4.17)$$

Les paramètres K , V_m , n , R et D associés à ce modèle sont obtenus par optimisation en minimisant l'erreur entre les mesures et les valeurs données par la relation (4.17). Après optimisation, les paramètres de la table 4.4 sont obtenus, avec une erreur $\varepsilon = 2.1016 \times 10^{-1}$ et le résultat de cette modélisation est visible sur la figure 4.15.

R	D	V_m	K	n
7.8470	23.0125	3.6175	5.7118×10^{-3}	103.1433

TABLE 4.4: Paramètres du modèle (4.10)

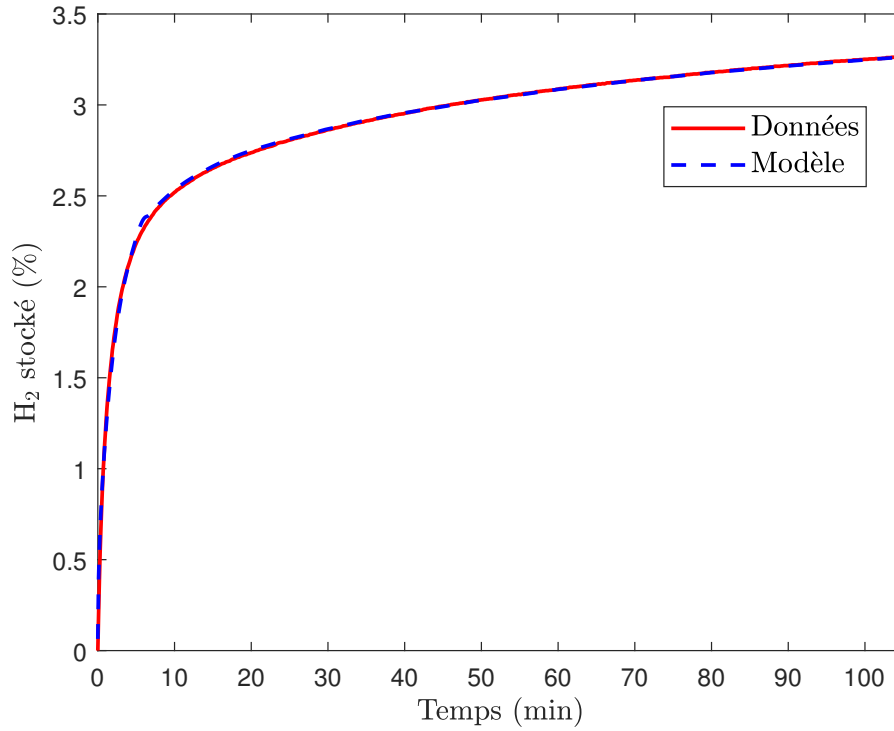


FIGURE 4.15: Comparaison entre la réponse du modèle (4.17) et la quantité d'hydrogène stockée dans le matériau après 104 minutes

En conclusion, l'équation de diffusion utilisée capte le comportement de type puissance du phénomène considéré, pour un même nombre de paramètre que le modèle non entier utilisé (relation (4.10)). Son efficacité est moindre, mais nous invite à étudier ce type de modèle en choisissant différemment l'isotherme de la relation (4.11). Ce type de modélisation est tout de même de bonne qualité et sa construction permet de faire apparaître des paramètres liés à des grandeurs physiques du procédé.

4.4 Conclusion

Le phénomène d'absorption a été étudié dans ce chapitre via le stockage d'hydrogène dans des matériaux métalliques poreux. La mise en place d'un banc d'hydrogène est présentée dans ce chapitre et a permis de générer des données de débit (entrée) et de pression (sortie) d'hydrogène. L'analyse de ces mesures a permis de mettre en évidence leur comportement de type puissance. Un modèle basé sur des équations de diffusion à coefficients spatialement variable a été appliqué à ce phénomène et son efficacité en terme de compacité et de précision a été comparée à un modèle non entier. Cela confirme l'aptitude des modèles de diffusion à coefficients spatialement variables pour capturer des comportements de type puissance, comme cela avait été proposé dans le chapitre 2.

Dans un second temps, un jeu de données de stockage d'hydrogène issu de la littérature a été étudié. Le protocole expérimental est décrit et le comportement de type puissance de la cinétique d'hydrogène stocké est mis en évidence. Un modèle basé sur des équations de diffusion est proposé. Ce modèle diffère de celui de la première partie de ce chapitre. En effet, celui-ci est non linéaire et il est supposé que lors de la diffusion de l'hydrogène dans le matériau, celui-ci réagit avec le milieu métallique. Cette réaction conduit alors à proposer un isotherme liant le volume d'hydrogène absorbé (et donc stocké) avec la pression. Le volume restant continue alors à diffuser le long du matériau. Cette approche de modélisation est comparé à un modèle non

entier. Sa précision est moindre, mais d'assez bonne qualité pour permettre d'envisager une amélioration, avec par exemple d'autres isothermes.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

Un des objectifs de ce travail de thèse était d'étudier des phénomènes pouvant générer un comportement entrée-sortie de type puissance et de proposer des outils de modélisation adéquats. Dans un premier temps, différents concepts liés aux systèmes dynamiques sont définis. Le concept de mémoire longue est introduit et son lien avec ce qui est qualifié de comportement de type puissance est explicité. Un recensement de différents phénomènes générant des comportements de type puissance a été effectué ainsi qu'une explication potentielle pour l'origine de ce type de comportement, liée à des phénomènes internes stochastiques. Des liens ont été mis en évidence entre comportement de type puissance et géométrie fractale ainsi qu'avec différentes caractéristiques que peuvent posséder des systèmes dynamiques, que sont ici la récursivité, la fractalité, l'auto-similarité, etc. Le chapitre 2 présente différents outils pour capturer les comportements de type puissance. L'outil usuel est basé sur la dérivation non entière. Les notions fondamentales de cet outil sont présentées et certaines limitations sont mises en évidence et justifient les propositions de modèles qui suivent. La première proposition est un modèle basé sur les équations intégrales de Volterra. Il est montré que ces modèles peuvent être vus comme une généralisation des modèles non entiers. Après une étude de différents noyaux, puis la présentation d'une méthode pour déterminer le noyau à partir de données connues, l'efficacité de ce type de modèle pour capturer un comportement de type puissance est montrée sur une application : des données de charge/décharge d'une batterie Lithium-ion. Le second type de modèle proposé, les modèles à retards distribués, a une forme proche des modèles basés sur les équations intégrales de Volterra. La distribution des retards permet la capture de la mémoire d'un système et en particulier, permet de capturer les comportements de type puissance. Cela est montré sur les mêmes données de charge d'une batterie. La troisième proposition concerne des équations de diffusion à coefficients spatialement variables. Il est montré, à partir d'une discrétisation sous la forme d'un réseau RC de type Cauer, que de telles équations génèrent des comportements de type puissance, sous certaines conditions sur la distribution des résistances et des capacités. Ces équations serviront à modéliser des données de stockage/déstockage d'hydrogène dans le chapitre 4. Le dernier type de modèle considéré est un modèle non-linéaire. Partant de la modélisation de l'accroissement d'un tas de sable, une équation non-linéaire, dite affine en l'entrée, en résulte. Cette équation et ses généralisations génèrent des trajectoires au comportement de type puissance. Le chapitre 3 a permis de révéler le comportement de type puissance du phénomène d'adsorption à l'aide de simulations numériques et l'efficacité de modèles non linéaires, dit affines en l'entrée, pour capturer ce comportement. Une comparaison avec plusieurs modèles linéaires et non linéaires, entiers et non entiers, issus de la littérature, montre l'efficacité du modèle non-linéaire proposé. Une application détaillée de ce dernier modèle est effectuée sur des données de dépôt de CO_2 . De plus, l'efficacité de ce type de modèle est montrée sur un phénomène idéalisé d'adsorption qu'est la « random sequential adsorption » dans le cas 2D et dans le cas fractal afin de prendre en compte des caractéristiques éventuelles de la surface sur laquelle les agents (particules, ions, disques, etc.) se déposent. Cela montre une nouvelle fois le lien entre comportement de type puissance et géométrie fractale. Le chapitre 4 propose des outils de modélisation pour

des phénomènes de stockage d'hydrogène. Dans un premier temps, une étude est réalisée sur un banc d'essai mis en place dans le cadre de cette thèse et dont une description est effectuée. Cette étude propose d'utiliser un modèle basé sur des équations de diffusion à coefficients spatialement variables. Il a été montré que ces équations produisent des comportements de type puissance. Après une discrétisation sous la forme d'un réseau RC de type Cauer, ce modèle est implémenté afin de modéliser le stockage/déstockage d'un réservoir d'hydrogène. Suivant la méthodologie utilisée pour les différentes applications, l'efficacité d'un tel modèle est comparée à un modèle non entier. Au vu de cette analyse, une équation de diffusion non-linéaire est appliquée à un autre jeu de données. Cette équation prend en compte un isotherme d'adsorption, correspondant à la fixation des particules d'hydrogène dans les pores du milieu de stockage.

Au travers de l'ensemble de ces développements et applications, ce travail de thèse montre qu'il existe de nombreux modèles capables de capter les comportements de type puissance, en plus des modèles non entiers. La plupart de ces modèles existaient déjà bien avant l'apogée des modèles non entiers de ces 30 dernières années. Outre les modèles non entiers, souvent utilisés dans la littérature car ils permettent de rendre compte fidèlement du comportement entrée-sortie de phénomènes générant des comportements de type puissance, les modèles alternatifs étudiés dans le cadre de ce travail permettent de travailler avec des variables d'état et des paramètres liés à des grandeurs physiques du phénomène représenté, avec un nombre comparable de paramètres. Cela induit de nombreux avantages en termes d'initialisation, ou pour la synthèse d'observateurs par exemple.

Perspectives

Analyse et synthèse des modèles proposés

Ce travail est essentiellement un travail de modélisation. En termes de perspectives, dans un premier temps, une étude approfondie des modèles proposés permettrait de définir un cadre dans lequel chacun d'eux est pertinent. Une analyse de ces modèles permettrait de proposer des méthodes d'identification, de préciser leur stabilité, leur robustesse, ... Tout cela, en vue de leur utilisation pour l'analyse et la commande de systèmes physique. Embarquer ces systèmes nécessite également de se poser la question de leur complexité algorithmique.

Modèles stochastiques

L'exploration de l'aspect stochastique de ces différents phénomènes, permettrait d'affiner les modèles proposés, voire d'en proposer de nouveaux. Actuellement les phénomènes à mémoire longue, en terme de processus stochastique, sont souvent modélisés à l'aide de modèles basés sur des opérateurs non entiers, tels que les modèles ARFIMA (pour *Autoregressive Fractionally Integrated Model*) qui généralisent les modèles ARIMA (pour *Autoregressive Integrated Moving Average*). La forme générale d'un modèle ARFIMA(p, d, q), avec $p \in \mathbb{N}$, $q \in \mathbb{N}$ et $d \in \mathbb{R}$ est donnée par

$$\left(1 - \sum_{i=1}^p \phi_i B^i\right) (1 - B)^d X_t = \left(1 + \sum_{i=1}^q \theta_i B^i\right) \varepsilon_t, \quad (4.18)$$

où X_t est une série temporelle qui constitue les données que l'on cherche à modéliser, B est un opérateur de retard : $B^n X_t = X_{t-n}$ pour tout $t > n$, $n \in \mathbb{N}$ et ε_t est un terme d'erreur assimilable à un bruit blanc. Les paramètres du modèle sont ϕ_i et θ_i . Et on a

$$(1 - B)^d = \sum_{k=0}^{\infty} \binom{d}{k} (-B)^k, \quad (4.19)$$

qui constitue la base de la définition non entière de Gröndwald-Letnikov et en possède, en terme d'infinité, les mêmes limitations.

D'autres modèles similaires ont été développés et sont présentés dans [15] et une communauté active s'intéresse au développement d'outils de modélisation basés sur des processus stochastiques, et dont les applications se retrouvent en grand nombre dans les domaines de la finance.

Modèles de diffusion-réaction pour le stockage d'hydrogène

Le stockage d'hydrogène semble être composé de deux phénomènes sous-jacent : un phénomène de diffusion (l'hydrogène se diffuse dans le matériau poreux) et un phénomène de réaction (l'hydrogène réagit avec le matériau ou se fixe dans les pores de celui-ci). Ceci conduit à envisager des modèles de réaction-diffusion de la forme :

$$\frac{\partial U(z, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 U(z, t)}{\partial z^2} + R(U),$$

où le terme $R(\cdot)$ définit la réaction locale de la substance (ici de l'hydrogène), avec l'environnement (ici le matériau poreux). De tels modèles sont utilisés pour modéliser efficacement des formations de schéma comme par exemple les tâches sur la fourrure de certains animaux. Il serait donc intéressant d'étudier le potentiel d'équations de diffusion-réaction pour produire des comportements de type puissance.

Modèles variant dans le temps

Un autre type de modèles à envisager sont les modèles variants dans le temps (*time varying model*). À titre d'exemple, le modèle d'Avrami est souvent utilisé afin de modéliser des cinétiques de cristallisation, ou d'autres changements de phases ou des réactions chimiques [6, 44]. Ce modèle est décrit par la relation

$$x(t) = K \left(1 - e^{-(\alpha t)^\nu} \right). \quad (4.20)$$

La transformée de Laplace de la relation (4.20) est donnée par :

$$x(s) = K \left[\frac{1}{s} - \frac{1}{\alpha} \sum_{r=0}^{\infty} \frac{(-\alpha)^r \Gamma(1 + \nu r)}{r! \left(\frac{s}{\alpha} \right)^{1 + \nu r}} \right]. \quad (4.21)$$

La figure 4.16 montre la réponse en fréquence de $x(s)$ et met en évidence le comportement de type puissance.

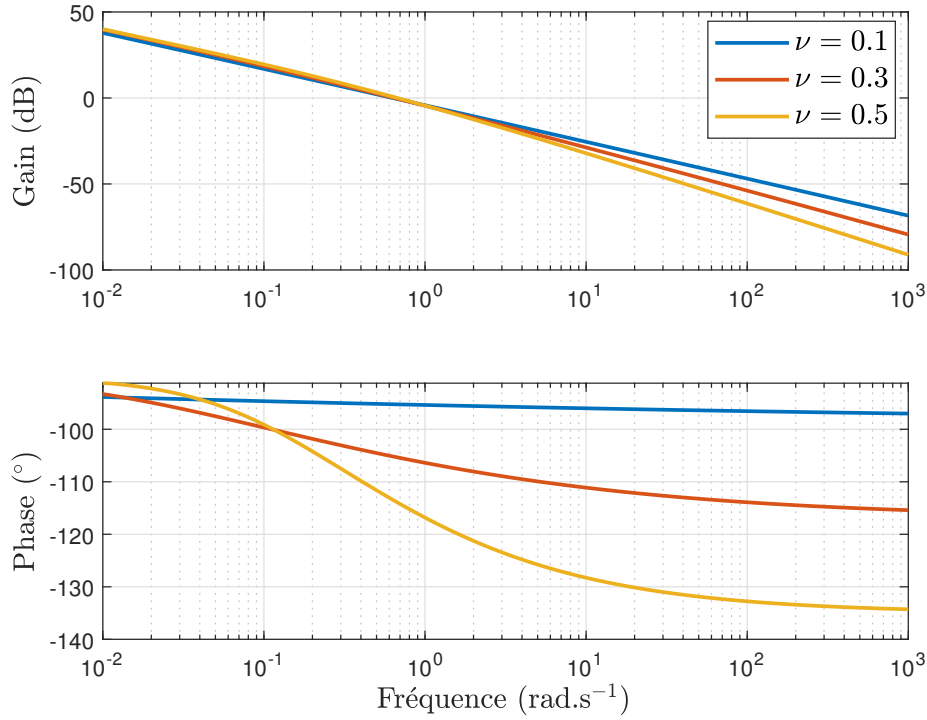


FIGURE 4.16: Réponse fréquentielle de $x(s)$ pour $\alpha = 1$, $\nu = 0.1$, $\nu = 0.3$ et $\nu = 0.5$

De plus, la fonction $x(t)$ dans la relation (4.20) est solution de l'équation différentielle

$$\frac{dx(t)}{dt} = -\nu\alpha^\nu t^{\nu-1}x(t) + K\nu\alpha^\nu t^{\nu-1}. \quad (4.22)$$

Cette équation fait intervenir des singularités. Ce problème peut être résolu en faisant intervenir une constante et donc une équation de la forme

$$\frac{dx(t)}{dt} = -\nu\alpha^\nu (t+c)^{\nu-1}x(t) + K\nu\alpha^\nu (t+c)^{\nu-1}, \quad (4.23)$$

qui montre également un comportement de type puissance. Ainsi des modèles variants dans le temps sont à envisager pour capturer des comportements de type puissance.

Ce travail n'est donc qu'un commencement, dans le sens où il montre l'efficacité de modèles parfois peu considérés, pour modéliser les comportements de type puissance. Considérer ces comportements en utilisant les modèles proposés dans ce travail ouvre alors d'innombrables pistes de recherche dans le domaine de la modélisation des comportements de type puissance et dans le domaine de l'analyse et de l'identification des modèles.

Annexe A

Démonstration du théorème 1

Cette annexe propose une démonstration du théorème 1 utilisé au chapitre 1, théorème à présent rappelé :

Théorème. *Un système LTI à mémoire longue est un système possédant l'une des trois assertions équivalentes suivantes dans une gamme de fréquence bornée :*

1. *Sa réponse impulsionnelle $h(t)$ décroît lentement par rapport au temps :*

$$h(t) = \frac{K_t}{t^{1-\nu}} \mathcal{H}(t), \quad 0 < \nu < \frac{1}{2}. \quad (\text{A.1})$$

2. *Pour une entrée $u(t)$ de type bruit blanc, de variance σ , sa fonction d'autocorrélation est de la forme :*

$$R_y(\zeta) = \frac{\sigma K_t^2 4^{-\nu} \Gamma(\nu) \Gamma(\frac{1}{2} - \nu)}{\sqrt{\pi}} \zeta^{2\nu-1}. \quad (\text{A.2})$$

3. *Pour une entrée $u(t)$ de type bruit blanc, de variance σ , sa densité spectrale de puissance est de la forme :*

$$S_y(\omega) = \frac{\sigma K_\omega^2}{\omega^{2\nu}}. \quad (\text{A.3})$$

Démonstration :

Soit $u(t)$ et $y(t)$ respectivement l'entrée et la sortie d'un modèle dynamique LTI à une seule entrée et une seule sortie. L'entrée $u(t)$ est supposée être un bruit blanc, et soit $R_y(\xi)$ l'autocorrélation de la sortie définie par :

$$R_y(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} y(t + \xi) y(t) dt. \quad (\text{A.4})$$

En outre, soit $S_y(\omega)$ la densité spectrale de puissance de sortie définie par :

$$S_y(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_y(\xi) e^{-j\omega\xi} d\xi. \quad (\text{A.5})$$

La fonction d'autocorrélation $R_y(\xi)$ de la sortie du système $y(t)$ est liée à la fonction d'autocorrélation $R_u(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} u(t + \xi) u(t) dt$ de l'entrée du système $u(t)$ par la relation :

$$R_y(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} u(t - p) h(p) dp \int_{-\infty}^{+\infty} u(t + \xi - q) h(q) dq dt \quad (\text{A.6})$$

ou (si les permutations d'intégrales sont autorisées)

$$R_y(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} h(p)h(q) \left[\int_{-\infty}^{+\infty} u(t-p)u(t+\xi-q) \right] dq dp \quad (\text{A.7})$$

En utilisant le changement de variable $t'=t-p$, la relation (A.7) devient

$$R_y(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} h(p)h(q) \left[\int_{-\infty}^{+\infty} u(t')u(t'+\xi+p-q) \right] dq dp \quad (\text{A.8})$$

ou

$$R_y(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} h(p)h(q)R_u(\xi+p-q) dq dp. \quad (\text{A.9})$$

Si $u(t)$ est un bruit blanc de variance σ , alors $R_u(\xi) = \sigma\delta(\xi)$ où $\delta(\cdot)$ est la fonction de Dirac. Ainsi,

$$R_y(\xi) = \sigma \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} h(p)h(q)\delta(\xi+p-q) dq dp. \quad (\text{A.10})$$

En utilisant la relation (4),

$$S_y(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} h(p)h(q)R_u(\xi+p-q) e^{-j\omega\xi} dq dp d\xi. \quad (\text{A.11})$$

En utilisant $\tau = \xi + p - q$, la relation précédente devient

$$S_y(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} h(p) e^{-j\omega p} dp \int_{-\infty}^{+\infty} h(q) e^{-j\omega q} \int_{-\infty}^{+\infty} R_u(\tau) e^{-j\omega\tau} d\tau \quad (\text{A.12})$$

et donc, si $H(j\omega)$ désigne la réponse en fréquence (et $H^*(j\omega)$ son conjugué) du système dynamique considéré :

$$S_y(\omega) = H(j\omega)H^*(j\omega)S_u(\omega) = \sigma|H(j\omega)|^2. \quad (\text{A.13})$$

Considérons maintenant un système LTI dont la réponse impulsionnelle est de la forme

$$h(t) = \frac{K_t}{t^{1-\nu}} \mathcal{H}(t) \quad \text{et} \quad H(j\omega) = \frac{K_\omega}{(j\omega)^\nu}, \quad 0 < \nu < 2, K_t \in \mathbb{R}, K_\omega \in \mathbb{R} \quad (\text{A.14})$$

et, où $\mathcal{H}(t)$ est la fonction de Heaviside. D'après la relation (A.13), la densité spectrale de puissance de la sortie du système à un bruit blanc de variance σ est définie par .

$$S_y(\omega) = \frac{\sigma K_\omega^2}{\omega^{2\nu}} \quad (\text{A.15})$$

et présente un comportement de type loi de puissance dans le domaine fréquentiel. Selon la relation (A.10) pour un bruit blanc d'entrée $u(t)$ de variance σ , l'autocorrélation de sortie est définie par

$$R_y(\xi) = \sigma \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} h(p)h(q)\delta(\xi+p-q) dq dp \quad (\text{A.16})$$

ou comme la fonction intégrée est différente de 0 seulement si $\xi + p = q$,

$$R_y(\xi) = \sigma \int_0^{+\infty} h(p)h(p+\xi) dp = \sigma \int_0^{+\infty} \frac{K_t}{p^{1-\nu}} \frac{K_t}{(p+\xi)^{1-\nu}} dp \quad (\text{A.17})$$

et donc si $\Gamma(\cdot)$ désigne la fonction gamma d'Euler :

$$R_y(\xi) = \frac{\sigma K_t^2 4^{-\nu} \Gamma(\nu) \Gamma(\frac{1}{2} - \nu)}{\sqrt{\pi}} \xi^{2\nu-1}. \quad (\text{A.18})$$

Cela finit de démontrer le théorème 1.

Annexe B

Exemple de calcul de la réponse impulsionnelle d'un intégrateur non entier

Cette annexe propose un exemple de calcul de la réponse impulsionnelle de la fonction de transfert non-entière suivante :

$$H(p) = \frac{1}{p^\nu} \quad \text{avec} \quad p \in \mathbb{C} \quad \text{et} \quad 0 < \nu < 1. \quad (\text{B.1})$$

On a $h(t)$, la réponse impulsionnelle, qui s'obtient en effectuant la transformée inverse de Laplace de $H(p)$. On a donc, par définition de la transformée inverse de Laplace (formule de Bromwich-Mellin) :

$$h(t) = \mathcal{L}^{-1}\{H(p)\}(t) = \frac{1}{2i\pi} \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{c-iT}^{c+iT} e^{pt} H(p) dp \quad (\text{B.2})$$

où $c > \mathcal{R}(p_k)$, $\forall p_k \in \{\text{singularités de } H\}$.

Afin de déterminer cette intégrale, on utilise le théorème des résidus :

Théorème B.1 (Théorème des résidus). *Soient U un ouvert simplement connexe de $\mathbb{C}$, $\{a_1, \dots, a_n\}$ un ensemble fini de points de U et f une fonction définie et holomorphe sur $U \setminus \{a_1, \dots, a_n\}$. Alors pour tout lacet Γ , on a*

$$\int_{\Gamma} f(z) dz = 2i\pi \sum_{k=1}^n \text{Res}(f, z_k) \text{Ind}_{\Gamma}(z_k). \quad (\text{B.3})$$

Dans notre cas, on a une unique singularité en $p = 0$ pour H .

De plus, p^ν a un sens pour $p \in \mathbb{C} \setminus \mathbb{R}^-$, donc pour $\arg(p) \in]-\pi, \pi[$. On considère donc le contour de la figure B.1.

Ainsi,

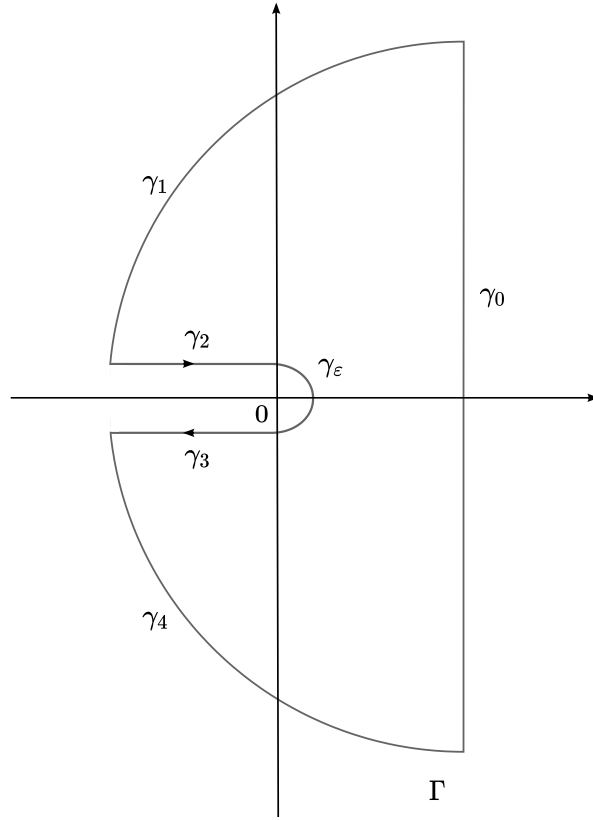
$$\frac{1}{2i\pi} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{pt} H(p) dp = \frac{1}{2i\pi} \int_{\gamma_0} e^{pt} H(p) dp = -\frac{1}{2i\pi} \int_{\Gamma-\gamma_0} e^{pt} H(p) dp + \text{Res}(f, 0) \text{Ind}_{\Gamma}(0) \quad (\text{B.4})$$

où $f(p) = e^{pt} H(p)$.

Le contour considéré ne contient pas la singularité, donc le résidu est nul.

On a quand $R \rightarrow \infty$ et $\varepsilon \rightarrow 0$

$$\int_{\Gamma-\gamma_0} e^{pt} H(p) dp = \int_{\gamma_1} e^{pt} H(p) dp + \int_{\gamma_2} e^{pt} H(p) dp + \int_{\gamma_\varepsilon} e^{pt} H(p) dp + \int_{\gamma_3} e^{pt} H(p) dp + \int_{\gamma_4} e^{pt} H(p) dp \quad (\text{B.5})$$

FIGURE B.1: Chemin Γ utilisé pour le calcul de $h(t)$

Intégrale sur γ_1 et γ_4 :

Par le lemme de Jordan B.1, on peut négliger les intégrales sur les arcs circulaires lorsque $R \rightarrow \infty$, i. e.

$$\int_{\gamma_1 + \gamma_4} e^{pt} H(p) dp = 0 \quad (\text{B.6})$$

Lemme B.1 (de Jordan). Soit f une fonction méromorphe dans un domaine D entièrement dans le demi-plan supérieur fermé, continue sur l'axe réel et de la forme $f(z) = e^{iaz} g(z)$ où a est un réel strictement positif.

Si de plus $\max_{\theta \in [0, \pi]} |g(re^{i\theta})|$ tend vers 0 quand r tend vers l'infini, alors

$$\lim_{r \rightarrow \infty} \oint_{C(0, r) \cap D} f(z) dz = 0 \quad (\text{B.7})$$

Remarque. Cet énoncé reste valable pour un demi-disque vertical, ou même une portion de ce demi-disque, comme considéré ici.

Intégrale sur γ_2 et γ_3 :

Effectuons sur γ_2 , le changement de variable $p = xe^{i\pi}$, $x > 0$, donc $dp = e^{i\pi} dx$. Et sur γ_3 , le changement de variable $p = xe^{-i\pi}$, $x > 0$, donc $dp = e^{-i\pi} dx$.

On a donc

$$\begin{aligned}
\int_{\gamma_2+\gamma_3} e^{pt} H(p) dp &= \int_{\gamma_2} e^{pt} H(p) dp + \int_{\gamma_3} e^{pt} H(p) dp \\
&= \int_{\infty}^0 \frac{e^{-xt}}{(xe^{i\pi})^\nu} e^{i\pi} dx + \int_0^{\infty} \frac{e^{-xt}}{(xe^{-i\pi})^\nu} e^{-i\pi} dx \\
&= \int_0^{\infty} \frac{e^{-xt}}{(xe^{i\pi})^\nu} dx - \int_0^{\infty} \frac{e^{-xt}}{(xe^{-i\pi})^\nu} dx \\
&= \int_0^{\infty} \frac{e^{-xt}}{x^\nu} (e^{-i\nu\pi} - e^{i\nu\pi}) dx \\
&= -2i \sin(\nu\pi) \int_0^{\infty} \frac{e^{-xt}}{x^\nu} dx
\end{aligned} \tag{B.8}$$

Intégrale sur γ_ε :

Nulle d'après le lemme d'estimation quand $\varepsilon \rightarrow 0$.

Lemme B.2 (d'estimation). *Si f est une fonction d'une variable complexe et à valeurs complexes, continue sur le chemin rectifiable γ , on a :*

$$\left| \int_{\gamma} f(z) dz \right| \leq L(\gamma) \max_{z \in \text{Im}(\gamma)} |f(z)| \tag{B.9}$$

où $L(\gamma)$ désigne la longueur du chemin γ et $\text{Im}(\gamma)$ désigne l'image de γ .

Conclusion

On a, quand $R \rightarrow \infty$ et $\varepsilon \rightarrow 0$

$$\int_{\Gamma-\gamma_0} e^{pt} H(p) dp = \int_{\gamma_2+\gamma_3} e^{pt} H(p) dp = -2i \sin(\nu\pi) \int_0^{+\infty} \frac{e^{-xt}}{x^\nu} dx \tag{B.10}$$

Finalement,

$$\begin{aligned}
h(t) &= \frac{1}{2i\pi} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{pt} H(p) dp = -\frac{1}{2i\pi} \int_{\Gamma-\gamma_0} e^{pt} H(p) dp \\
&= \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{e^{-xt}}{x^\nu} dx, \quad \forall t > 0 \text{ et } 0 < \nu < 1.
\end{aligned} \tag{B.11}$$

On peut encore simplifier en posant $u = xt$, on a, comme $t > 0$, $x = \frac{u}{t}$ et $dx = \frac{du}{t}$.

On a donc

$$h(t) = \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{e^{-u}}{t \left(\frac{u}{t}\right)^\nu} = \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} t^{\nu-1} \int_0^{+\infty} e^{-u} u^{-\nu} du. \tag{B.12}$$

En introduisant la fonction gamma, on obtient

$$h(t) = \frac{\sin(\nu\pi)}{\pi} t^{\nu-1} \Gamma(1-\nu). \tag{B.13}$$

De plus, la fonction gamma vérifie la formule des compléments (dite aussi formule d'Euler) : pour tout $\nu \in \mathbb{C}$, avec $0 < \Re(\nu) < 1$, on a

$$\Gamma(1-\nu)\Gamma(\nu) = \frac{\pi}{\sin(\nu\pi)}. \tag{B.14}$$

D'où,

$$h(t) = \frac{t^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)}, \quad \forall t > 0 \text{ et } 0 < \nu < 1. \tag{B.15}$$

Annexe C

Démonstration du théorème 2

Cette annexe propose une démonstration du théorème 2 utilisé au chapitre 2, théorème à présent rappelé :

Théorème. *Si $N \rightarrow \infty$,*

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K(\sigma, \rho) Z(s)^\nu \left[\frac{1 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\sigma, \rho) \left(\frac{Z(s)}{\sigma}\right)^{-\nu-k+1} + C_{2k}(\sigma, \rho) \left(\frac{Z(s)}{\sigma}\right)^{-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\rho, \sigma) (Z(s))^{-\nu-k+1} + C_{2k}(\rho, \sigma) (Z(s))^{-k}} \right] \quad (\text{C.1})$$

Démonstration :

Pour démontrer ce théorème, supposons que la fonction $g(Z(s), \sigma, \rho)$ est donnée par :

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K(\sigma, \rho) Z(s)^{\nu(\sigma, \rho)} \left[\frac{1 + \sum_{k=1}^{\infty} a_{2k-1}(\sigma, \rho) (Z(s))^{-\nu(\sigma, \rho)-k+1} + a_{2k}(\sigma, \rho) (Z(s))^{-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} b_{2k-1}(\sigma, \rho) (Z(s))^{-\nu(\rho, \sigma)-k+1} + b_{2k}(\sigma, \rho) (Z(s))^{-k}} \right], \quad (\text{C.2})$$

où $0 < \nu(\sigma, \rho) < 1$ et $0 < \nu(\rho, \sigma) < 1$.

Afin de rendre la démonstration plus lisible, les notations suivantes sont utilisées : ν, ν', K, a_k, b_k désignent respectivement $\nu(\sigma, \rho), \nu(\rho, \sigma), K(\sigma, \rho), a_k(\sigma, \rho), b_k(\sigma, \rho)$. La relation (C.2) peut alors être réécrite sous la forme :

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K Z(s)^\nu \left[\frac{1 + \sum_{k=1}^{\infty} a_{2k-1} Z(s)^{-\nu-k+1} + a_{2k} Z(s)^{-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} b_{2k-1} Z(s)^{-\nu'-k+1} + b_{2k} Z(s)^{-k}} \right]. \quad (\text{C.3})$$

De plus, soit K', a'_k, b'_k désignant les fonctions $K(\rho, \sigma), a_k(\rho, \sigma), b_k(\rho, \sigma)$. La fonction $g(Z(s), \rho, \sigma)$ peut alors être définie par :

$$g(Z(s), \rho, \sigma) = K' Z(s)^{\nu'} \left[\frac{1 + \sum_{k=1}^{\infty} a'_{2k-1} Z(s)^{-\nu'-k+1} + a'_{2k} Z(s)^{-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} b'_{2k-1} Z(s)^{-\nu-k+1} + b'_{2k} Z(s)^{-k}} \right]. \quad (\text{C.4})$$

En notant $\mathcal{Z} = \frac{Z(s)}{\sigma}$, la fonction $g\left(\frac{Z(s)}{\sigma}, \rho, \sigma\right)$ se réécrit sous la forme :

$$1 + g(\mathcal{Z}, \rho, \sigma) = \frac{1 + K' \mathcal{Z}^{\nu'} + \sum_{k=1}^{\infty} b'_{2k-1} \mathcal{Z}^{-\nu-k+1} + K' a'_{2k-1} \mathcal{Z}^{-k+1} + b'_{2k} \mathcal{Z}^{-k} + K' a'_{2k} \mathcal{Z}^{\nu'-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} b'_{2k-1} \mathcal{Z}^{-\nu-k+1} + b'_{2k} \mathcal{Z}^{-k}} \quad (\text{C.5})$$

ou

$$1 + g(\mathcal{Z}, \rho, \sigma) = K' \mathcal{Z}^{\nu'} \frac{\mathcal{A}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} b'_{2k-1} \mathcal{Z}^{-\nu-k+1} + b'_{2k} \mathcal{Z}^{-k}}, \quad (\text{C.6})$$

où

$$\mathcal{A} = 1 + \frac{\mathcal{Z}^{-\nu'}}{K'} + \sum_{k=1}^{\infty} \frac{b'_{2k-1}}{K'} \mathcal{Z}^{-\nu-\nu'-k+1} + a'_{2k-1} \mathcal{Z}^{-\nu'-k+1} + \frac{b'_{2k}}{K'} \mathcal{Z}^{-\nu'-k} + a'_{2k} \mathcal{Z}^{-k} \quad (\text{C.7})$$

D'après la propriété 2,

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = \frac{Z(s)}{1 + g(Z(s), \rho, \sigma)}, \quad (\text{C.8})$$

et en utilisant la relation (C.6), $g(Z(s), \sigma, \rho)$ est donnée par

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = \frac{\sigma^{\nu'} Z(s)^{1-\sigma'} \left[1 + \sum_{k=1}^{\infty} b'_{2k-1} Z(s)^{-\nu-k+1} + b'_{2k} Z(s)^{-k} \right]}{K' \mathcal{B}}, \quad (\text{C.9})$$

où

$$\begin{aligned} \mathcal{B} = & 1 + \frac{Z(s)^{-\nu'}}{K'} + \sum_{k=1}^{\infty} \frac{b'_{2k-1}}{K'} Z(s)^{-\nu-\nu'-k+1} + a'_{2k-1} Z(s)^{-\nu'-k+1} + \dots \\ & \dots \frac{b'_{2k}}{K'} Z(s)^{-\nu'-k} + a'_{2k} Z(s)^{-k}. \end{aligned} \quad (\text{C.10})$$

Une identification terme à terme des relations (C.2) et (C.9) conduit à l'équation suivante :

$$\nu + \nu' = 1 \quad \text{ou} \quad \nu(\sigma, \rho) + \nu(\rho, \sigma) = 1 \quad (\text{C.11})$$

et

$$K = \frac{\sigma^{\nu'}}{K'} \quad \text{ou} \quad K(\sigma, \rho) K(\rho, \sigma) = \sigma^{\nu(\rho, \sigma)}. \quad (\text{C.12})$$

La relation (C.12) est symétrique par rapport à ρ et σ . On peut alors écrire

$$\sigma^{\nu(\rho, \sigma)} = K(\sigma, \rho) K(\rho, \sigma) = K(\rho, \sigma) K(\sigma, \rho) = \rho^{\nu(\sigma, \rho)} \quad (\text{C.13})$$

et donc

$$\sigma^{\nu(\rho, \sigma)} = \rho^{\nu(\sigma, \rho)}, \quad (\text{C.14})$$

ou, en prenant le logarithme dans la relation (C.13) :

$$\nu(\rho, \sigma) \log(\sigma) = \nu(\sigma, \rho) \log(\rho). \quad (\text{C.15})$$

Les relations (C.11) et (C.15) donnent les relations suivantes :

$$\nu(\sigma, \rho) = \frac{\log(\sigma)}{\log(\sigma) + \log(\rho)} \quad \text{et} \quad \nu(\rho, \sigma) = \frac{\log(\rho)}{\log(\sigma) + \log(\rho)}. \quad (\text{C.16})$$

Une identification terme à terme des relations (C.2) et (C.9) conduit aussi aux équations suivantes :

$$a_{2k-1} = b'_{2k-1} \sigma^{\nu+k-1} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \quad (\text{C.17})$$

$$b_{2k-1} = \left(a'_{2k-1} + \frac{b'_{2k-1}}{K'} \right) \sigma^{\nu'+k-1} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_0 = 1 \quad (\text{C.18})$$

$$a_{2k} = b'_{2k} \sigma^k \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \quad (\text{C.19})$$

$$b_{2k} = \left(a'_{2k} + \frac{b'_{2k-1}}{K'} \right) \sigma^k \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^*. \quad (\text{C.20})$$

La relation (C.17) étant symétrique par rapport à ρ et σ , elle peut être réécrite sous la forme :

$$a'_{2k-1} = b_{2k-1} \sigma^{\nu'+k-1} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \quad (\text{C.21})$$

permettant de réécrire la relation (C.18) comme suit :

$$b_{2k-1} = b_{2k-1} (\rho\sigma)^{\nu'+k-1} + \frac{b'_{2k-2}}{K'} \sigma^{\nu'+k-1} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_0 = 1 \quad (\text{C.22})$$

ou, en utilisant la relation (C.12)

$$b_{2k-1} = \frac{K b'_{2k-2} \sigma^{k-1}}{\left(1 - (\rho\sigma)^{\nu'+k-1}\right)} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_0 = 1, \quad (\text{C.23})$$

ou, par symétrie entre ρ et σ :

$$b'_{2k-1} = \frac{K' b_{2k-2} \rho^{k-1}}{\left(1 - (\rho\sigma)^{\nu'+k-1}\right)} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_0 = 1, \quad (\text{C.24})$$

De nouveau, par symétrie entre ρ et σ , la relation (C.19) peut être réécrite sous la forme :

$$a'_{2k} = b_{2k} \rho^k \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^*, \quad (\text{C.25})$$

ce qui permet de réécrire la relation (C.20) comme suit :

$$b_{2k} = b_{2k-1} (\rho\sigma)^k + \frac{b'_{2k-2}}{K'} \sigma^k \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \quad (\text{C.26})$$

et donc

$$b_{2k} = \frac{b_{2k-1} \sigma^k}{K' \left(1 - (\rho\sigma)^k\right)} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_1 = \frac{K'}{1 - \sigma} \quad (\text{C.27})$$

ou, en utilisant (C.24)

$$b_{2k} = \frac{b_{2k-2} \sigma^k \rho^{k-1}}{\left(1 - (\rho\sigma)^k\right) \left(1 - (\rho\sigma)^{\nu'+k-1}\right)} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_1 = 1. \quad (\text{C.28})$$

La symétrie de (C.28) par rapport ρ et σ permet d'écrire

$$b'_{2k} = \frac{b'_{2k-2} \rho^k \sigma^{k-1}}{\left(1 - (\rho\sigma)^k\right) \left(1 - (\rho\sigma)^{\nu'+k-1}\right)} \quad \text{avec} \quad k \in \mathbb{N}^* \text{ et } b'_1 = 1 \quad (\text{C.29})$$

Les relations (C.16), (C.24) et (C.28) montrent que la fonction $g(Z(s), \sigma, \rho)$ vérifie la relation

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K(\sigma, \rho) Z(s)^\nu \left[\frac{1 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\rho, \sigma) K(\rho, \sigma) \left(\frac{Z(s)}{\sigma}\right)^{-\nu-k+1} + C_{2k}(\rho, \sigma) \left(\frac{Z(s)}{\sigma}\right)^{-k}}{1 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\sigma, \rho) K(\sigma, \rho) (Z(s))^{-\nu'-k+1} + C_{2k}(\sigma, \rho) (Z(s))^{-k}} \right], \quad (\text{C.30})$$

avec

$$\nu(\sigma, \rho) = \frac{\log(\sigma)}{\log(\sigma) + \log(\rho)} \quad 0 < \nu(\sigma, \rho) < 1, \quad (\text{C.31})$$

$$c_{2k}(\sigma, \rho) = \frac{\sigma^k \rho^{k-1}}{\left(1 - (\rho\sigma)^k\right) \left(1 - (\rho\sigma)^{\nu+k-1}\right)} c_{2k-2}(\sigma, \rho) \quad \text{avec } k \in \mathbb{N}^* \text{ et } c_0(\sigma, \rho) = 1, \quad (\text{C.32})$$

$$c_{2k-1}(\sigma, \rho) = \frac{\sigma^{k-1}}{\left(1 - (\rho\sigma)^{\nu+k-1}\right)} \quad \text{avec } k \in \mathbb{N}^* \setminus \{1\} \text{ et } c_1(\sigma, \rho) = \frac{1}{1 - \rho}. \quad (\text{C.33})$$

Dans la relation (C.30), seul le coefficient $K(\sigma, \rho)$ reste à calculer. Il est possible d'en donner une expression sous la forme d'un rapport de deux séries étant donné que la relation (C.30) peut être réécrite sous la forme :

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K(\sigma, \rho) Z(s)^\nu \left[\frac{1 + K(\rho, \sigma) h_1\left(\frac{Z(s)}{\sigma}, \rho, \sigma\right) + h_2\left(\frac{Z(s)}{\sigma}, \rho, \sigma\right)}{1 + K(\sigma, \rho) h_1(Z(s), \sigma, \rho) + h_2(Z(s), \sigma, \rho)} \right] \quad (\text{C.34})$$

ou, en utilisant la relation (C.12)

$$g(Z(s), \sigma, \rho) = K(\sigma, \rho) Z(s)^\nu \left[\frac{1 + \frac{\sigma^\nu}{K(\sigma, \rho)} h_1\left(\frac{Z(s)}{\sigma}, \rho, \sigma\right) + h_2\left(\frac{Z(s)}{\sigma}, \rho, \sigma\right)}{1 + K(\sigma, \rho) h_1(Z(s), \sigma, \rho) + h_2(Z(s), \sigma, \rho)} \right], \quad (\text{C.35})$$

avec

$$h_1(Z(s), \sigma, \rho) = \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}(\sigma, \rho) Z(s)^{-\nu'-k+1} \quad (\text{C.36})$$

et

$$h_2(Z(s), \sigma, \rho) = \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k}(\sigma, \rho) Z(s)^{-k}. \quad (\text{C.37})$$

En posant $Z(s) = 1$ dans la relation (C.35), le coefficient $K(\sigma, \rho)$ est donné par :

$$K(\sigma, \rho) = \frac{g(1, \sigma, \rho) + h_2(1, \sigma, \rho) - \sigma^\nu h_1(1, \rho, \sigma)}{1 - h_1(1, \sigma, \rho) + h_2(1, \rho, \sigma)} \quad (\text{C.38})$$

Ce qui finit de démontrer le théorème 2.

Annexe D

Génération des données d'ASA

Cette annexe détaille la manière dont sont générées les données d'adsorption via l'Adsorption Séquentielle Aléatoire (en anglais, *Random Sequential Adsorption*) dans le cas 2D et dans le cas fractal (cf. section 3.3 du chapitre 3).

Les programmes ont tous été écrits sur Matlab. Ils ne sont pas optimaux en terme de complexité ni de simulation du RSA. Ils sont pertinents pour l'étude des dynamiques de recouvrement, mais il est certainement possible de développer des méthodes plus efficaces, notamment en terme de temps de simulation.

Cas 2D

On considère que le phénomène d'adsorption a lieu sur une surface carrée de taille T_S pour des disques de rayon R .

Un couple de réels dans l'intervalle $[0, T_S] \times [0, T_S]$ est sélectionné aléatoirement suivant une distribution uniforme via la fonction `rand` de Matlab. Ce couple de réels constitue le centre d'un disque de rayon R . Si le disque rentre entièrement dans la surface et ne superpose aucun des autres disques précédemment posés, alors le disque se fixe sur la surface. Le couple de réels est alors enregistré dans un vecteur. On itère cela un grand nombre de fois (selon les besoins, jusqu'à plusieurs millions d'itérations). Pour réduire le temps de calcul, la surface est divisée en plusieurs zones. Un disque sera comparé uniquement avec les disques placés dans une zone voisine.

Par exemple, pour une surface de taille $T_S = 50$, un maillage de taille 5 est effectué : `Ngrid=TS/5`. Une cellule carré `V_ab` de taille `Ngrid` est créée pour contenir les abscisses des centres des disques posés et une autre, `V_ord` pour les ordonnées.

Un couple (p, q) est sélectionné uniformément dans $[0, T_S] \times [0, T_S]$. On teste ensuite la distance entre (p, q) et les centres de tous les disques précédemment posés dans un voisinage de (p, q) , c'est-à-dire les points de la surface dont les abscisses sont enregistrées dans le vecteur `V_ab{p_ent,q_ent}` et les ordonnées dans `V_ord{p_ent,q_ent}`, ainsi que dans les 8 autres zones autour de $\{p_ent, q_ent\}$ accessibles par $\{p_ent \pm 1, q_ent \pm 1\}$, où `p_ent=ceil(p/5)` et `q_ent=ceil(q/5)`.

```
if p_ent+1<=Ngrid && length(V_ab{p_ent+1,q_ent})~=0
    for i=1:length(V_ab{p_ent+1,q_ent})
        s=V_ab{p_ent+1,q_ent}(i);
        t=V_ord{p_ent+1,q_ent}(i);
        D=[D sqrt((p-s)^2+(q-t)^2)];
    end
end
if p_ent+1<=Ngrid && q_ent-1>=1 && length(V_ab{p_ent+1,q_ent-1})~=0
    for i=1:length(V_ab{p_ent+1,q_ent-1})
```

⋮

Si le vecteur D est vide ou si toutes les valeurs contenues sont supérieures ou égales à $2R$, alors p est ajouté au vecteur $V_{ab}\{p_{ent}, q_{ent}\}$ et q au vecteur $V_{ord}\{p_{ent}, q_{ent}\}$. Le nombre de disques nbr_disc est alors incrémenté. Le vecteur D est ensuite réinitialisé au vecteur nul. Finalement,

```
aire_occ=pi*R^2*nb_disc;
densite(n)=aire_occ/TS^2;
```

La procédure est jouée à nouveau, soit jusqu'à ce qu'un certain nombre d'itérations soit effectué, soit jusqu'à ce qu'une certaine valeur de densité de recouvrement soit atteinte.

Cas fractal

Dans le cas fractal, la méthode est la même sauf concernant la sélection aléatoire du couple (p, q) . En effet, la fractale est constituée de points dont les abscisses se trouvent dans un vecteur X et les ordonnées dans un vecteur Y . Le couple (p, q) est donc sélectionné uniformément parmi X pour p et parmi Y pour q avec la fonction `randi` de Matlab.

Annexe E

Méthode d'optimisation et d'estimation des paramètres

Cette annexe détaille la manière dont sont estimés les paramètres dans les différentes identifications effectuées dans ce manuscrit.

Les paramètres ont été optimisés via la fonction `fmincon` de Matlab [73]. Cette fonction permet de trouver des minima locaux d'une fonction non linéaire sous contraintes non linéaires :

$$\min_x f(x) \quad \text{tel que} \quad \begin{cases} c(x) \leq 0 \\ ceq(x) = 0 \\ A \cdot x \leq b \\ Aeq \cdot x = beq \\ lb \leq x \leq ub. \end{cases} \quad (\text{E.1})$$

Dans notre cas on cherche à minimiser l'erreur quadratique

$$\varepsilon = \sum_i (\text{Donnees}(i) - \text{Modele}(i))^2, \quad (\text{E.2})$$

où `Donnees` et `Modele` correspondent respectivement à des vecteurs contenant les données aux instants considérés (données mesurées ou obtenues par simulations de processus aléatoires tels que celui présenté dans l'annexe D) et la réponse du modèle dont on cherche à optimiser les paramètres.

On définit donc une fonction qui prend en entrée les données (dans un vecteur `data`) considérées et les paramètres du modèle associé (dans un vecteur `Xnorm`) et qui retourne en sortie l'erreur ε (dans un vecteur `Err` initialisé à `x0`). Cette fonction fait appel, dans certains cas, à un fichier Simulink en charge du calcul de la réponse temporelle. La minimisation de cette fonction ne contient pas de contraintes $c(x)$ ou $ceq(x)$ et il n'y a pas non plus d'inégalités donc A , b , Aeq et beq sont fixés au vecteur nul `[]`. Des bornes lb et ub sont fixées pour les paramètres et des options concernant le nombre maximum d'évaluations ainsi que la tolérance admise sont intégrées.

On a ainsi, par exemple, l'appel suivant pour un problème d'optimisation

```
[x,Err]=fmincon('function',x0,[],[],[],[],lb,ub,[],options,Xnorm,data);
```

Plusieurs algorithmes existent et sont intégrés dans Matlab pour résoudre un tel problème. La fonction `fmincon` utilise par défaut l'algorithme dit de points intérieurs [72] et c'est celui qui a été utilisé pour tous les problèmes d'optimisation dans ce manuscrit.

En ce qui concerne l'initialisation des paramètres du modèle et le choix des bornes `lb` et `ub`, il s'agit d'essai-erreur, étant donné que `fmincon` peut conduire à des minima locaux. Afin de rendre les comparaisons aussi équitables que possible, cette même approche est utilisée pour

l'ensemble des modèles, même lorsque des méthodes plus efficaces existaient, comme pour les modèles non entier. De ce fait, les comparaisons entre modèles peuvent néanmoins souffrir de cette sensibilité de l'approche à l'initialisation. Aussi, une des perspectives importantes de ce travail consiste donc à développer des méthodes d'estimation dédiées aux modèles proposés.

Bibliographie

- [1] Trésor de la langue française informatisé. <https://www.le-tresor-de-la-langue.fr/definition/cin%C3%A9tique#top>. Dernier accès : 01/04/2022.
- [2] *Fragmentation Processes : Topics in Atomic and Molecular Physics*. Cambridge University Press, 2012.
- [3] Z. Adamczyk, J. Barbasz, and M. Cieřla. Kinetics of fibrinogen adsorption on hydrophilic substrates. *Langmuir*, 26(14) :11934–11945, 2010.
- [4] S. G. Alves and M. L. Martins. Cluster–cluster aggregation with particle replication and chemotaxy : a simple model for the growth of animal cells in culture. *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, 2010(09) :P09012, sep 2010.
- [5] A. Atangana. New fractional derivatives with nonlocal and non-singular kernel : Theory and application to heat transfer model. *Thermal Science*, 20, 01 2016.
- [6] M. Avrami. Kinetics of phase change. i general theory. *The Journal of Chemical Physics*, 7(12) :1103–1112, 1939.
- [7] P. Bak. How nature works : The science of self-organised criticality. *Journal of Artificial Societies and Social Simulation*, 1997.
- [8] P. Bak, C. Tang, and K. Wiesenfeld. Self-organized criticality : An explanation of the 1/f noise. *Phys. Rev. Lett.*, 59 :381–384, Jul 1987.
- [9] K. Banerjee, J. Shamanna, and S. Ray. Surface morphology of a modified ballistic deposition model. *Phys. Rev. E*, 90 :022111, Aug 2014.
- [10] J. F. Banfield, S. A. Welch, H. Zhang, T. T. Ebert, and R. L. Penn. Aggregation-based crystal growth and microstructure development in natural iron oxyhydroxide biomineralization products. *Science*, 289(5480) :751–754, 2000.
- [11] E. Barkai, R. Metzler, and J. Klafter. From continuous time random walks to the fractional fokker-planck equation. *Phys. Rev. E*, 61 :132–138, Jan 2000.
- [12] G. Barkema, M. Howard, and J. Cardy. Reaction-Diffusion Front for $A + B \rightarrow \emptyset$ in One Dimension. *Physical Review E*, 53, 03 1996.
- [13] H. Bashiri and A. Shajari. Theoretical Study of Fractal-Like Kinetics of Adsorption. *Adsorption Science & Technology*, 32(8) :623–634, 2014.
- [14] J. Beran. Statistics for long-memory processes. 1994.
- [15] J. Beran, Y. Feng, S. Ghosh, and R. Kulik. *Long-Memory Processes*. Springer, 2013.
- [16] A. Bonfanti, J. L. Kaplan, G. Charras, and A. Kabla. Fractional viscoelastic models for power-law materials. *Soft Matter*, 16 :6002–6020, 2020.
- [17] A. Bonilla-Petriciolet, D. I. Mendoza-Castillo, and H. E. Reynel-Ávila. *Adsorption Processes for Water Treatment and Purification*. Springer, 2017.
- [18] N. Brilliantovt, P. Krapivsky, and Y. Andrienkot. Random space-filing-tiling : Fractal properties and kinetics. *Journal of Physics A General Physics*, 27 :L381, 01 2014.

- [19] F. Brouers and O. Sotolongo-Costa. Generalized Fractal Kinetics in Complex Systems (Application to Biophysics and Biotechnology). *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 368(1) :165–175, 2006.
- [20] T. M. Brown, J. Brouwer, G. S. Samuelsen, F. H. Holcomb, and J. King. Accurate simplified dynamic model of a metal hydride tank. *International Journal of Hydrogen Energy*, 33(20) :5596–5605, 2008.
- [21] S. Brunauer, L. S. Deming, W. E. Deming, and E. Teller. On a Theory of the van der Waals Adsorption of Gases. *Journal of the American Chemical Society*, 62(7) :1723–1732, 1940.
- [22] S. Butera and M. Di Paola. A physically based connection between fractional calculus and fractal geometry. *Annals of Physics*, 350 :146–158, 2014.
- [23] M. Caputo and M. Fabrizio. A new definition of fractional derivative without singular kernel. *Prog Fract Differ Appl*, 1 :73–85, 04 2015.
- [24] J.-H. Cho, S.-S. Yu, M.-Y. Kim, S.-G. Kang, Y.-D. Lee, K.-Y. Ahn, and H.-J. Ji. Dynamic modeling and simulation of hydrogen supply capacity from a metal hydride tank. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(21) :8813–8828, 2013.
- [25] A. Öchsner, G. E. Murch, and I. V. Belova. *Advanced Diffusion Processes and Phenomena*. Trans Tech Publications Ltd, 2014.
- [26] M. Ciesla and J. Barbasz. Random sequential adsorption on fractals. *The Journal of chemical physics*, 137 :044706, 07 2012.
- [27] M. Ciesla and J. Barbasz. Modeling of interacting dimer adsorption. *Surface Science*, 612 :24–30, 2013.
- [28] M. Cieřla and R. M. Ziff. Boundary conditions in random sequential adsorption. *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, 2018(4) :043302, April 2018.
- [29] K. S. Cole and R. H. Cole. Dispersion and absorption in dielectrics i. alternating current characteristics. *The Journal of Chemical Physics*, 9 :941–951, 1941.
- [30] K. Czelej, K. Ćwieka, J. C. Colmenares, and K. Kurzydłowski. Insight on the Interaction of Methanol-Selective Oxidation Intermediates with Au- or/and Pd-Containing Monometallic and Bimetallic Core@shell Catalysts. *Langmuir*, 32 :7493–7502, 08 2016.
- [31] K. Czelej, K. Ćwieka, and K. Kurzydłowski. CO₂ stability on the Ni low-index surfaces : Van der Waals corrected DFT analysis. *Catalysis Communications*, 80 :33 – 38, 05 2016.
- [32] A. Dauphiné and D. Provitolo. Les catastrophes et la théorie des systèmes auto organisés critiques. 01 2003.
- [33] P. de Rango, A. Chaise, J. Charbonnier, D. Fruchart, M. Jehan, P. Marty, S. Miraglia, S. Rivoirard, and N. Skryabina. Nanostructured magnesium hydride for pilot tank development. *Journal of Alloys and Compounds*, 446-447 :52–57, 2007. Proceedings of the International Symposium on Metal-Hydrogen Systems, Fundamentals and Applications (MH2006).
- [34] P. de Rango, S. Nachev, D. Fruchart, P. Marty, and S. Miraglia. Le stockage solide de l’hydrogène au service des énergies renouvelables. In *Matériaux 2015*, Madhia, Tunisia, Mar. 2015.
- [35] L. Debnath. Recent applications of fractional calculus to science and engineering. *International Journal of Mathematics and Mathematical Sciences*, 2003 :3413–3442, 2003.
- [36] R. Dekeyser, A. Maritan, and A. Stella. *Diffusion on fractal substrates*, volume 438, pages 21–36. 10 2006.
- [37] J.-L. Deneubourg. *Emergence et insectes sociaux*, pages 99–117. Le Pommier, 2002.

- [38] Desmos. Stochastic fractal terrain. <https://www.desmos.com/calculator/xesfg0xtaw?lang=fr>. Dernier accès : 17/03/2022.
- [39] D. Dhar. Self-organized critical state of sandpile automaton models. *Phys. Rev. Lett.*, 64 :1613–1616, Apr 1990.
- [40] M. Durand-Charre. *La microstructure des aciers et des fontes*, chapter 11. La transformation martensitique. EDP Sciences, 2012.
- [41] H. El-Nashar and H. Cerdeira. Dynamic scaling in a ballistic deposition model for a binary system. *Physical review. E, Statistical physics, plasmas, fluids, and related interdisciplinary topics*, 61 :6149–55, 07 2000.
- [42] A. Erdelyi, W. Magnus, F. Oberhettinger, and F. G. Tricomi. *Tables of Integral Transforms : Vol. : 2*. McGraw-Hill Book Company, Incorporated, 1954.
- [43] C. Escudero, S. B. Yuste, E. Abad, and F. Le Vot. Chapter 4 - Reaction–Diffusion Kinetics in Growing Domains. In A. S. Srinivasa Rao and C. Rao, editors, *Integrated Population Biology and Modeling, Part A*, volume 39 of *Handbook of Statistics*, pages 131–151. Elsevier, 2018.
- [44] M. Fanfoni and M. Tomellini. The johnson-mehl- avrami-kohnogorov model : A brief review. *Il Nuovo Cimento D*, 20 :1171–1182, 1998.
- [45] J. Feder and I. Giaever. Adsorption of ferritin. *Journal of Colloid and Interface Science*, 78(1) :144–154, November 1980.
- [46] E. Fernandez, J. A. Bolea, G. Ortega, and E. Louis. Are neurons multifractals ? *Journal of neuroscience methods*, 89 :151–7, 08 1999.
- [47] P. J. Flory. Intramolecular reaction between Neighboring Substituents of Vinyl Polymers. *Journal of the American Chemical Society*, 61(6) :118–1521, June 1939.
- [48] Z. Fusco, M. Rahmani, R. Bo, R. Verre, N. Motta, D. Neshev, and A. Tricoli. Nanostructured dielectric fractals on resonant plasmonic metasurfaces for selective and sensitive optical sensing of volatile compounds. *Advanced Materials*, 30 :1800931, 06 2018.
- [49] R. Ghez. *Diffusion Phenomena : Cases and Studies*. John Wiley et Sons, 1988.
- [50] J. Gouyet, M. Rosso, B. Sapoval, and J. Colonna. Structure fractale d’un front de diffusion. <https://www.canal-u.tv/chaines/sec/pour-1-enseignement/structure-fractale-d-un-front-de-diffusion-1985>, 1985. Dernier accès : 05/04/2022.
- [51] D. Grady. Dynamic fragmentation of solids and liquids. In *Physics of Shock and Impact, Volume 1*, 2053-2563, pages 2–1 to 2–111. IOP Publishing, 2017.
- [52] M. Haerifar and S. Azizian. Fractal-Like Adsorption Kinetics at the Solid/Solution Interface. *The Journal of Physical Chemistry C*, 116 :13111–13119, 06 2012.
- [53] H. Halil, P. Menini, and H. Aubert. Novel microwave gas sensor using dielectric resonator with SnO₂ sensitive layer. *Procedia Chemistry*, 1 :935–938, 2009.
- [54] G. Hernandez, R. Leon, L. Salinas, and E. Dimnet. A fragmentation model with neighborhood interaction. *Applied Mathematical Modelling*, 36(4) :1694–1702, 2012.
- [55] Y.-S. Ho and G. Mckay. The kinetics of Sorption of Divalent Metal Ions Onto Sphagnum Moss Peat. *Water Research*, 34 :735–742, 02 2000.
- [56] C. Ionescu, A. Lopes, D. Copot, J. Machado, and J. Bates. The role of fractional calculus in modeling biological phenomena : A review. *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation*, 51 :141–159, 2017.
- [57] A. Isidori. *Nonlinear Control Systems*. Communications and Control Engineering. Springer, 3rd edition, 1995.

- [58] A. E. Islam, N. Goel, S. Mahapatra, and M. A. Alam. *Reaction-Diffusion Model*, pages 181–207. Springer India, New Delhi, 2016.
- [59] H. Khalil. *Nonlinear Systems*. Prentice Hall, 2002.
- [60] V. L. Kharitonov. *Systems with Distributed Delay*, pages 133–170. Birkhäuser Boston, Boston, 2013.
- [61] P. L. Krapivsky, S. Redner, and E. Ben-Naim. *A Kinetic View of Statistical Physics*. Cambridge University Press, 2010.
- [62] A. M. Lacasta, I. R. Cantalapiedra, C. E. Auguet, A. Peñaranda, and L. Ramírez-Piscina. Modeling of spatiotemporal patterns in bacterial colonies. *Phys. Rev. E*, 59 :7036–7041, Jun 1999.
- [63] S. Lagergren. About the Theory of So-Called Adsorption of Soluble Substances. *Kungliga Svenska Vetenskapsakademiens Handlingar*, 24(4) :1–39, November 1898.
- [64] M. Lazarević, M. Rapaić, and T. Šekara. *Introduction to Fractional Calculus with Brief Historical Background*, pages 3–16. 01 2014.
- [65] A. Le Mehaute and G. Crepy. Introduction to transfer and motion in fractal media : The geometry of kinetics. *Solid State Ionics*, 9-10 :17–30, 1983.
- [66] W. E. Leland, M. S. Taqqu, W. Willinger, and D. V. Wilson. On the self-similar nature of ethernet traffic (extended version). *IEEE/ACM Transactions on Networking*, 2(1) :1–15, 1994.
- [67] A. Liemert, T. Sandev, and H. Kantz. Generalized langevin equation with tempered memory kernel. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 466 :356–369, 2017.
- [68] H. Liu, P. Sun, R. C. Bowman, Z. Z. Fang, Y. Liu, and C. Zhou. Effect of air exposure on hydrogen storage properties of catalyzed magnesium hydride. *Journal of Power Sources*, 454 :227936, 2020.
- [69] E. C. Lopes, F. S. dos Anjos, E. F. Vieira, and A. R. Cestari. An alternative avrami equation to evaluate kinetic parameters of the interaction of hg(ii) with thin chitosan membranes. *Journal of Colloid and Interface Science*, 263(2) :542–547, 2003.
- [70] J. T. Machado, V. Kiryakova, and F. Mainardi. Recent history of fractional calculus. *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation*, 16(3) :1140–1153, 2011.
- [71] A. Malek and S. Farooq. Comparison of isotherm models for hydrocarbon adsorption on activated carbon. *AIChE Journal*, 42(11) :3191–3201, 1996.
- [72] MathWorks. Constrained nonlinear optimization algorithms. <https://fr.mathworks.com/help/optim/ug/constrained-nonlinear-optimization-algorithms.html#brnpd5f>. Dernier accès : 20/12/2022.
- [73] MathWorks. fmincon. <https://fr.mathworks.com/help/optim/ug/fmincon.html>. Dernier accès : 20/12/2022.
- [74] Mathworld.wolfram.com. Random Walk–1-Dimensional. <https://mathworld.wolfram.com/RandomWalk1-Dimensional.html>. Dernier accès : 20/06/2022.
- [75] M. M. Meerschaert and S. Alla. *Stochastic Models for Fractional Calculus*. De Gruyter, 2011.
- [76] R. Metzler and J. Klafter. The random walk’s guide to anomalous diffusion : a fractional dynamics approach. *Physics Reports*, 339(1) :1–77, 2000.
- [77] G. Montseny, J. Audounet, and B. Mbodje. Optimal models of fractional integrators and application to systems with fading memory. In *Proceedings of IEEE Systems Man and Cybernetics Conference - SMC*, volume 5, pages 65–70 vol.5, 1993.

- [78] Montseny, Gérard. Diffusive representation of pseudo-differential time-operators. *ESAIM : Proc.*, 5 :159–175, 1998.
- [79] R. Nigmatullin and D. Baleanu. New relationships connecting a class of fractal objects and fractional integrals in space. *Fractional Calculus and Applied Analysis*, 16, 12 2013.
- [80] I. Nikolaou, H. Hallil, V. Conédéra, G. Deligeorgis, C. Dejous, and D. Rebiere. Inkjet-printed graphene oxide thin layers on love wave devices for humidity and vapor detection. *IEEE Sensors Journal*, 16(21) :7620–7627, 2016.
- [81] D. O. Ojwang, J. Grins, and G. Svensson. The adsorption kinetics of CO₂ on copper hexacyanoferrate studied by thermogravimetric analysis. *Microporous and Mesoporous Materials*, 272 :70–78, 2018.
- [82] A. Olaitan and A. V. Kolesnikov. *Modeling of hydrogen absorption/desorption in a metal hydride bed reactor - A Theoretical study*. 11 2015.
- [83] E. C. d. Oliveira and J. A. T. Machado. A Review of Definitions for Fractional Derivatives and Integral. *Mathematical Problems in Engineering*, 2014, 2014.
- [84] A. Otto, G. Radons, D. Bachrathy, and G. Orosz. Synchronization in networks with heterogeneous coupling delays. *Phys. Rev. E*, 97 :012311, Jan 2018.
- [85] A. Oustaloup, F. Levron, B. Mathieu, and F. Nanot. Frequency-band complex noninteger differentiator : characterization and synthesis. *IEEE Transactions on Circuits and Systems I : Fundamental Theory and Applications*, 47(1) :25–39, 2000.
- [86] R. Paris. Qu’est-ce que la criticalité auto-organisée? <http://www.matierevolution.fr/spip.php?article672>. Dernier accès : 17/03/2022.
- [87] I. Podlubny. *Fractional Differential Equations*. Academic Press, San Diego, 1999.
- [88] G. Pruessner. *Self-Organised Criticality : Theory, Models and Characterisation*. Cambridge University Press, 2012.
- [89] B. Rahman. Time-delay systems : An overview. *Nonlinear Phenomena in Complex Systems*, 23, 07 2020.
- [90] J. Rémi. Les phénomènes d’agrégation et les agrégats fractals. *Annales Des Télécommunications*, 41, 1986.
- [91] S. M. Ricci, J. Talbot, G. Tarjus, and P. Viot. Random sequential adsorption of anisotropic particles. II. low coverage kinetics. *The Journal of Chemical Physics*, 97 :5219–5228, 1992.
- [92] J.-P. Richard. Time-delay systems : an overview of some recent advances and open problems. *Automatica*, 39(10) :1667–1694, 2003.
- [93] A. Rényi. On a one-dimensional problem concerning random space filling. *Publications of the Mathematical Institute of the Hungarian Academy of Sciences*, 3 :109–127, Nov 1958.
- [94] M. Rosso, E. Chassaing, V. Fleury, and J.-N. Chazalviel. Shape evolution of metals electro-deposited from binary electrolytes. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 559 :165–173, 2003. International Symposium on Materials Processing for Nanostructured Devices 2001.
- [95] F. Rouquerol, J. Rouquerol, K. Sing, P. Llewellyn, and G. Maurin. *Adsorption by powders and porous solids : principles, methodology and applications*. Academic Press, 2nd edition, 2014.
- [96] J. Sabatier. Fractional-order derivatives defined by continuous kernels : Are they really too restrictive? *Fractal and Fractional*, 4(3), 2020.
- [97] J. Sabatier. Fractional state space description : A particular case of the volterra equations. *Fractal and Fractional*, 4(2), 2020.
- [98] J. Sabatier. Power law type long memory behaviors modeled with distributed time delay systems. *Fractal and Fractional*, 4(1), 2020.

- [99] J. Sabatier and C. Farges. Advantages of limited frequency band fractional integration operator in fractional models definition. 07 2019.
- [100] J. Sabatier, C. Farges, and V. Tartaglione. Some alternative solutions to fractional models for modelling long memory behaviours. *Mathematics*, 8, 2020.
- [101] J. Sabatier, C. Farges, and J.-C. Trigeassou. Fractional systems state space description : some wrong ideas and proposed solutions. *Journal of Vibration and Control*, 20(7) :1076–1084, May 2014.
- [102] J. Sabatier, J. M. Francisco, F. Guillemard, L. Lavigne, M. Moze, and M. Merveillaut. Lithium-ion batteries modeling : A simple fractional differentiation based model and its associated parameters estimation method. *Signal Processing*, 107 :290–301, 2015.
- [103] J. Sabatier, M. Merveillaut, R. Malti, and A. Oustaloup. How to impose physically coherent initial conditions to a fractional system? *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation*, 15 :1318–1326, 2010.
- [104] S. Samko, A. Kilbas, and O. Marichev. *Fractional integrals and derivatives : theory and applications*. Gordon and Breach Science, 1993.
- [105] T. Sandev. Generalized langevin equation and the prabhakar derivative. *Mathematics*, 5(4), 2017.
- [106] T. Sandev, A. Chechkin, H. Kantz, and R. Metzler. Diffusion and fokker-planck-smoluchowski equations with generalized memory kernel. *Fractional Calculus and Applied Analysis*, 18 :1006, 08 2015.
- [107] T. Sandev, W. Deng, and P. Xu. Models for characterizing the transition among anomalous diffusions with different diffusion exponents. *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*, 51(40) :405002, sep 2018.
- [108] T. Sandev, Z. Tomovski, J. L. A. Dubbeldam, and A. Chechkin. Generalized diffusion-wave equation with memory kernel. *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*, 52(1) :015201, nov 2018.
- [109] N. Santos and D. Santos. A fractal dimension minimum in electrodeposited copper dendritic patterns. *Chaos, Solitons & Fractals*, 116 :381–385, 2018.
- [110] B. Sapoval. *Universalités et fractales, jeux d'enfant ou délits d'initié*. Flammarion, november 1998.
- [111] S. Sastry. *Nonlinear Systems : Analysis, Stability, and Control*, volume 10 of *Interdisciplinary Applied Mathematics*. Springer, 1999.
- [112] R. Sips. On the structure of a catalyst surface. *The Journal of Chemical Physics*, 16(5) :490–495, 1948.
- [113] A. T. Skjeltorp. *Aggregation and Crystal Growth*, pages 1–17. Springer US, Boston, MA, 1987.
- [114] L. J. Slater. *Confluent Hypergeometric Functions*. U.S. Government Printing Office, Washington, 1964.
- [115] T. Smy, R. Tait, and M. Brett. Ballistic deposition simulation of via metallization using a quasi-three-dimensional model. *IEEE Transactions on Computer-Aided Design of Integrated Circuits and Systems*, 10(1) :130–135, 1991.
- [116] R. H. Swendsen. Dynamics of random sequential adsorption. *Physical Review A*, 24 :504 – 508, July 1981.
- [117] Y. Y. Tarasevich, V. V. Laptev, N. V. Vygornitskii, and N. I. Lebovka. Impact of defects on percolation in random sequential adsorption of linear k -mers on square lattices. *Phys. Rev. E*, 91 :012109, Jan 2015.

- [118] F. B. TATOM. The relationship between fractional calculus and fractals. *Fractals*, 03(01) :217–229, 1995.
- [119] toutverre.com. Qu'est-ce qu'un verre trempé? <https://www.toutverre.com/fr/services-et-conseils/nos-conseils/verre-trempe>. Dernier accès : 20/06/2022.
- [120] M. Turalska and B. West. Fractional dynamics of individuals in complex networks. *Frontiers in Physics*, 6, 10 2018.
- [121] T. Vicsek. *Fractal Growth Phenomena*. WORLD SCIENTIFIC, 2nd edition, 1992.
- [122] P. Viot, G. Tarjus, S. Ricci, and J. Talbot. Random sequential adsorption of anisotropic particles. I. jamming limit and asymptotic behavior. *The Journal of Chemical Physics*, 97 :5212–5218, 10 1992.
- [123] M. J. Vold. A numerical approach to the problem of sediment volume. *Journal of Colloid Science*, 14(2) :168–174, 1959.
- [124] V. Volterra. *Leçons sur les équations intégrales et les équations intégréo-différentielles*. Gauthier-Villars, 1913.
- [125] Y. Wang and H. Cerdeira. Kinetic growth of randomlike and ballisticlike deposition models. *Physical review. E, Statistical physics, plasmas, fluids, and related interdisciplinary topics*, 47 :3357–3361, 06 1993.
- [126] C. R. S. Williams, F. Sorrentino, T. E. Murphy, and R. Roy. Synchronization states and multistability in a ring of periodic oscillators : Experimentally variable coupling delays. *Chaos : An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science*, 23(4) :043117, 2013.
- [127] K. G. Wilson. Problems in physics with many scales of length. *Scientific American*, 241 :158–179, 1979.
- [128] G. Zhang and S. Torquato. Precise algorithm to generate random sequential addition of hard hyperspheres at saturation. *Physical Review E*, 88 :053312, Nov 2013.
- [129] Y. Zhang, H. Sun, H. H. Stowell, M. Zayernouri, and S. E. Hansen. A review of applications of fractional calculus in earth system dynamics. *Chaos, Solitons & Fractals*, 102 :29–46, 2017. Future Directions in Fractional Calculus Research and Applications.
- [130] Y.-R. Zhang, Q.-Y. He, and X. Yuan. Classic scaling fractal fractance approximation circuits : Optimization principle analysis and method. *Circuits, Systems, and Signal Processing*, 40, 06 2021.
- [131] R. Ziff and R. Vigil. Kinetics and fractal properties of the random sequential adsorption of line segments. *Journal of Physics A : Mathematical and General*, 23 :5103, 01 1990.
- [132] C. Zou, L. Zhang, X. Hu, Z. Wang, T. Wik, and M. Pecht. A review of fractional-order techniques applied to lithium-ion batteries, lead-acid batteries, and supercapacitors. *Journal of Power Sources*, 390 :286–296, 2018.